

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-069044

(43)Date of publication of application : 08.03.2002

(51)Int.Cl. C07C211/61

C07C 13/62

C09K 11/06

H05B 33/14

H05B 33/22

(21)Application number : 2000-255141 (71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22)Date of filing : 25.08.2000 (72)Inventor : HOSOKAWA CHISHIO
IWASUMI TOSHIHIRO

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescence element having a high heat resistance, and high luminous efficiency, and further to provide a new hydrocarbon compound usable for achieving the element.

SOLUTION: This new hydrocarbon compound is represented by the general formula (1): X_n-Ar₁, wherein, Ar₁ is a substituted or unsubstituted 6-40C aromatic ring group, a substituted or unsubstituted 6-40C arylamino group, a substituted or unsubstituted 6-60C diaminoaryl group, a substituted or unsubstituted 6-60C triaminoaryl group, a substituted or unsubstituted 3-40C heterocyclic group or a substituted or unsubstituted

ethenylene; X is a monovalent group having a fluoranthene structure; and n is an integer of 2-4. The organic electroluminescence element has at least one layer of an organic compound layer having a luminous layer, containing the new hydrocarbon compound.

* NOTICES *

**JPO and INPIT are not responsible for any
damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.



CLAIMS

[Claim(s)]

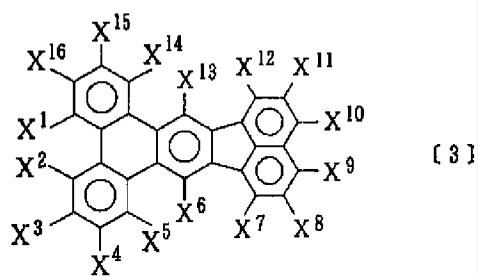
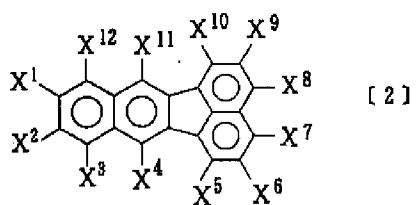
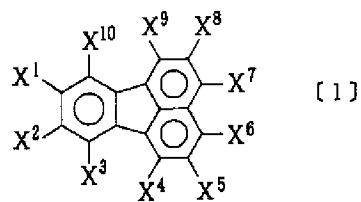
[Claim 1]A new hydrocarbon compound expressed with a following general formula (1).

X_n-Ar₁ --- (1)

the inside of a formula, and Ar₁ -- an aromatic ring group with 6-40 carbon atoms which are not replaced [substitution or]. A diamino aryl group with 6-60 carbon atoms which are not replaced [an arylamino group with 6-40 carbon atoms which are not replaced / substitution or /, substitution or], Ethenylene which is not replaced [a heterocycle group with 3-40 carbon atoms which are not replaced / substitution or /, substitution, or /, substitution, or], a basis of monovalence in which X has fluoranthene structure, and n are the integers of 2-4.

[Claim 2]Said X is a following general formula. [1]-The new hydrocarbon compound according to claim 1 being a basis of monovalence of a compound which has the structure shown in [3].

[Formula 1]



[General formula [1]-[3]] Independently X¹ - X¹⁶ among a formula, respectively A hydrogen atom, The straight chain which is not replaced [a halogen atom, substitution, or], branching, or an alkyl group with 1-30 annular carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an alkoxy group with 1-30 annular carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an alkylthio group with 1-30 annular carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or],

branching, or an alkenyl group with 2-30 annular carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an annular alkenyloxy group with 2-30 carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an annular alkenyl thio group with 2-30 carbon atoms, An aralkyloxy group with 7-30 carbon atoms which are not replaced [an aralkyl group with 7-30 carbon atoms which are not replaced / substitution or / substitution or], An aryl group with 6-20 carbon atoms which are not replaced [an aralkyl thio group with 7-30 carbon atoms which are not replaced / substitution or / substitution or], An amino group with 2-30 carbon atoms which are not replaced [an arylthio group with 6-20 carbon atoms which are not replaced / an aryloxy group with 6-20 carbon atoms which are not replaced / substitution or / substitution, or /, substitution, or], a cyano group, a hydroxyl group, a -COOR¹ group (among a basis) R¹ The straight chain which is not replaced [a hydrogen atom, substitution, or], branching, or an alkyl group with 1-30 annular carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an alkenyl group with 2-30 annular carbon atoms, . Express an aryl group with 6-30 carbon atoms which are not replaced [an aralkyl group with 7-30 carbon atoms which are not replaced / substitution or

/, substitution, or]. - a COR² group (the inside of a basis, and R² -- the straight chain which is not replaced [a hydrogen atom, substitution, or].) The straight chain which is not replaced [an alkyl group with branching or 1-30 annular carbon atoms, substitution, or], An aralkyl group with 7-30 carbon atoms which are not replaced [an alkenyl group with branching or 2-30 annular carbon atoms, substitution or], The -OCOR³ group showing an aryl group with 6-30 carbon atoms which are not replaced [substitution or], or an amino group (R³ among a basis) The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an alkyl group with 1-30 annular carbon atoms, an aryl group with 6-30 carbon atoms which are not replaced [an aralkyl group with 7-30 carbon atoms which are not replaced / an alkenyl group with the straight chain which is not replaced / substitution or /, branching, or 2-30 annular carbon atoms, substitution, or /, substitution, or] -- expressing -- expressing -- further -- among X¹ - X¹⁶, It may combine with each other and the adjoining basis and the substituent of each basis may form the ring which is not replaced [substitution or].]

[Claim 3]It is an organic electroluminescence element which has an organic compound film which becomes inter-electrode [of a couple] from a monolayer which has a luminous layer at least, or two or more layers, An organic

electroluminescence element, wherein at least one layer of this organic compound film contains the new hydrocarbon compound according to claim 1 or 2.

[Claim 4]An organic electroluminescence element which is an organic electroluminescence element which has an organic compound film which becomes inter-electrode [of a couple] from a monolayer which has a luminous layer at least, or two or more layers, and is characterized by this luminous layer containing the new hydrocarbon compound according to claim 1 or 2.

[Claim 5]It is an organic electroluminescence element which has an organic compound film which becomes inter-electrode [of a couple] from a monolayer which has a luminous layer at least, or two or more layers, An organic electroluminescence element, wherein an electronic injection layer or a hole injection layer contains the new hydrocarbon compound according to claim 1 or 2.

[Claim 6]The organic electroluminescence element according to claim 4 providing an inorganic compound layer between said luminous layer and an electrode.

[Claim 7]The organic electroluminescence element according to any one of

claims 3 to 6 containing a condensed multi-ring aromatic derivative as a luminescence center in said luminous layer.

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any

damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]About a new hydrocarbon compound and an organic electroluminescence element, especially this invention has high heat resistance, and relates to the new hydrocarbon compound which realizes the organic electroluminescence element of high luminous efficiency, and it.

[0002]

[Description of the Prior Art]The organic electroluminescence (EL) element which uses an organic substance is used as light sources, such as a plane emitter of wall tapestry television, and a back light of a display, and development

is performed briskly. In particular, these days, the compound which realizes the organic electroluminescence element and it which reconcile high heat resistance and a well head is developed. For example, although the element which used a phenyl anthracene compound and this for JP,8-12600,A is indicated and heat resistance is improved by glass transition temperature being not less than 140 **, The luminous efficiency computed by luminosity / power flux density / 10 was as low as about 2 cd/A, and improvement was called for. Heat resistance was not enough, although the element which used an amino anthracene compound and it was indicated by JP,10-72579,A and luminous efficiency is improved. Although the element which used the fluoranthene system compound was indicated by JP,10-189247,A, since it was a compound which consists of a monomer of a fluoranthene system compound, a heat-resistant improvement was insufficient.

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]This invention was made in order to solve the aforementioned technical problem, its heat resistance is high and an object of this invention is to provide the new hydrocarbon compound which realizes the organic electroluminescence element of high luminous efficiency, and it.

[0004]

[Means for Solving the Problem] An organic electroluminescence element in which this invention persons have the aforementioned desirable character. If a new hydrocarbon compound which aryl structure combined with fluoranthene structure is added on an organic compound film as a result of repeating research wholeheartedly that (the following and an organic EL device) should be developed, the heat resistance of an organic electroluminescence element will improve, It finds out electron hole transportability and electron transport property improving furthermore, and becoming high luminous efficiency, and came to complete this invention.

[0005] Namely, a new hydrocarbon compound, X_nAr_1 to which this invention is expressed with a following general formula (1) ... (1) the inside of a formula, and Ar_1 -- an aromatic ring group with 6-40 carbon atoms which are not replaced [substitution or]. A diamino aryl group with 6-60 carbon atoms which are not replaced [an arylamino group with 6-40 carbon atoms which are not replaced / substitution or /, substitution or], Ethenylene which is not replaced [a heterocycle group with 3-40 carbon atoms which are not replaced / a triamino aryl group with 6-60 carbon atoms which are not replaced /

substitution or /, substitution, or /, substitution, or], a basis of monovalence in which X has fluoranthene structure, and n are the integers of 2-4. It provides. This invention is an organic electroluminescence element (organic EL device) which has an organic compound film which becomes inter-electrode [of a couple] from a monolayer which has a luminous layer at least, or two or more layers, An organic electroluminescence element, wherein at least one layer of this organic compound film contains said new hydrocarbon compound is also provided.

[0006]

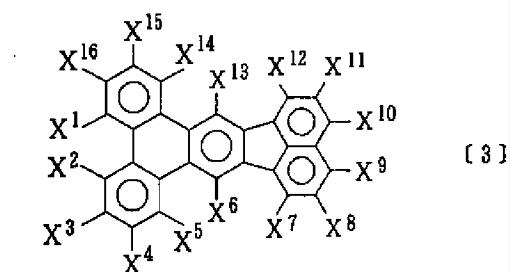
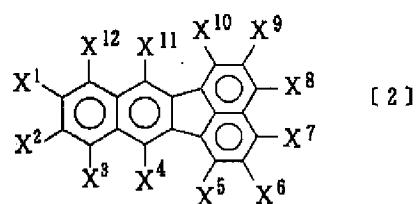
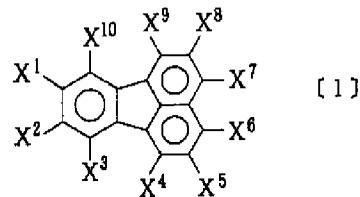
[Embodiment of the Invention]The new hydrocarbon compound of this invention is expressed with the above-mentioned general formula (1). Ar₁ among a formula An aromatic ring group with 6-40 carbon atoms which are not replaced [substitution or], A diamino aryl group with 6-60 carbon atoms which are not replaced [an arylamino group with 6-40 carbon atoms which are not replaced / substitution or /, substitution or], It is ethenylene which is not replaced [a heterocycle group with 3-40 carbon atoms which are not replaced / a triamino aryl group with 6-60 carbon atoms which are not replaced / substitution or /, substitution, or /, substitution, or]. The basis of the monovalence in which X has

fluoranthene structure, and n are the integers of 2-4.

[0007]this -- X -- a following general formula [1]-It is preferred that it is a basis of the monovalence of a compound which has the structure shown in [3].

[Formula

2]



[0008]General formula[1]-[3]Independently X¹ - X¹⁶ among a formula, respectively A hydrogen atom, The straight chain which is not replaced [a halogen atom, substitution, or], branching, or an alkyl group with 1-30 annular

carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an alkoxy group with 1-30 annular carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an alkylthio group with 1-30 annular carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an alkenyl group with 2-30 annular carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an annular alkenyloxy group with 2-30 carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an annular alkenyl thio group with 2-30 carbon atoms, An aralkyloxy group with 7-30 carbon atoms which are not replaced [an aralkyl group with 7-30 carbon atoms which are not replaced / substitution or /, substitution or], An aryl group with 6-20 carbon atoms which are not replaced [an aralkyl thio group with 7-30 carbon atoms which are not replaced / substitution or / substitution or], An amino group with 2-30 carbon atoms which are not replaced [an arylthio group with 6-20 carbon atoms which are not replaced / an aryloxy group with 6-20 carbon atoms which are not replaced / substitution or /, substitution, or /, substitution, or], a cyano group, a hydroxyl group, a -COOR¹ group (among a basis) R¹ The straight chain which is not replaced [a hydrogen atom, substitution, or], branching, or an alkyl group

with 1-30 annular carbon atoms, The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an alkenyl group with 2-30 annular carbon atoms, . Express an aryl group with 6-30 carbon atoms which are not replaced [an aralkyl group with 7-30 carbon atoms which are not replaced / substitution or /, substitution, or]. - a COR² group (the inside of a basis, and R² -- the straight chain which is not replaced [a hydrogen atom, substitution, or].) The straight chain which is not replaced [an alkyl group with branching or 1-30 annular carbon atoms, substitution, or], An aralkyl group with 7-30 carbon atoms which are not replaced [an alkenyl group with branching or 2-30 annular carbon atoms, substitution or], The -OCOR³ group showing an aryl group with 6-30 carbon atoms which are not replaced [substitution or], or an amino group (R³ among a basis) The straight chain which is not replaced [substitution or], branching, or an alkyl group with 1-30 annular carbon atoms, an aryl group with 6-30 carbon atoms which are not replaced [an aralkyl group with 7-30 carbon atoms which are not replaced / an alkenyl group with the straight chain which is not replaced / substitution or /, branching, or 2-30 annular carbon atoms, substitution, or /, substitution, or] -- expressing -- expressing -- further -- among X¹ - X¹⁶, It may combine with each other and the adjoining basis and the substituent of each

basis may form the ring which is not replaced [substitution or].

[0009]An organic EL device of this invention is an organic electroluminescence element which has an organic compound film which becomes inter-electrode [of a couple] from a monolayer which has a luminous layer at least, or two or more layers, and at least one layer of this organic compound film contains said new hydrocarbon compound. It is preferred that said luminous layer contains said new hydrocarbon compound. Containing said new hydrocarbon compound also has an electronic injection layer or a preferred hole injection layer. An inorganic compound layer may be provided between said luminous layer and an electrode.

It is still more desirable when a condensed multi-ring aromatic derivative is contained as a luminescence center in said luminous layer. it is because that heat resistance and luminous efficiency improve has the high fluorescence of fluoranthene structure, it will be referred to as n= 2-4 in a compound of the above-mentioned general formula (1) and glass transition temperature of this compound will become high further, if an organic compound film boils said new hydrocarbon compound further at least and it is made to contain.

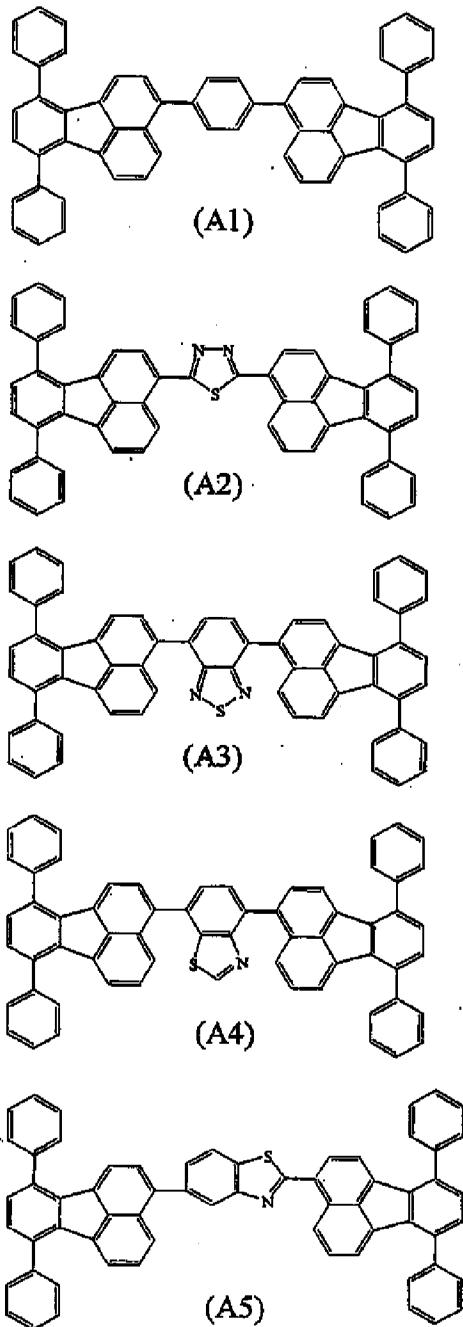
[0010]Although example of representation (A1) - (A24) of a new hydrocarbon compound of this invention is illustrated below, this invention is not limited to

these examples of representation.

[0011]

[Formula

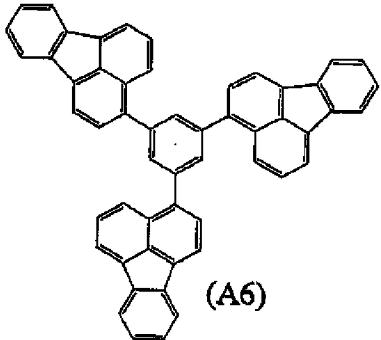
3]



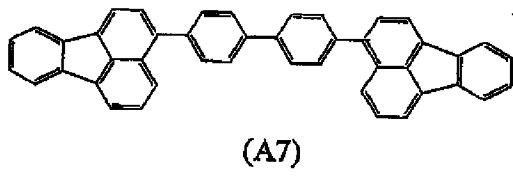
[0012]

[Formula

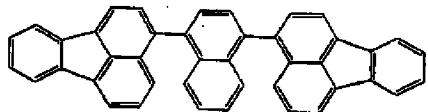
4]



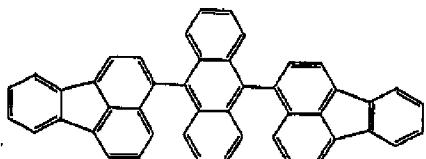
(A6)



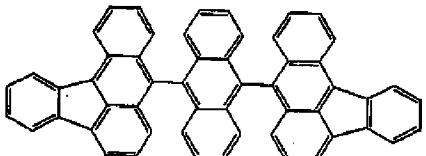
(A7)



(A8)



(A9)

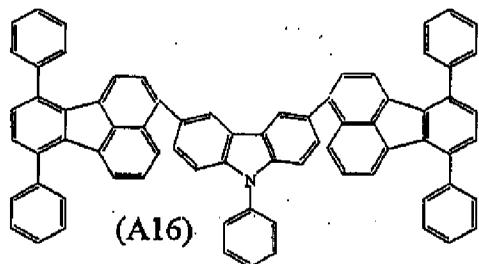
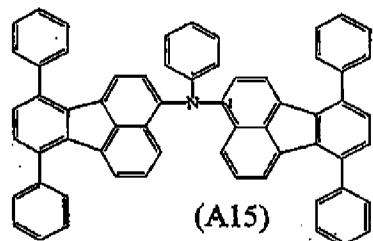
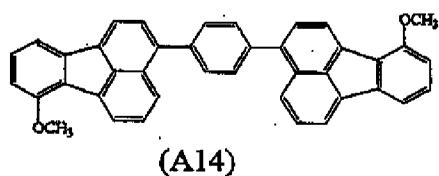
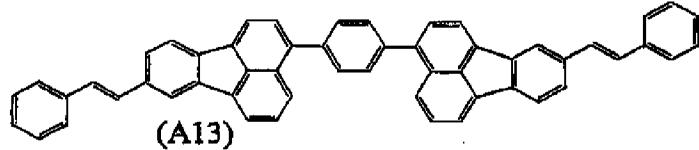
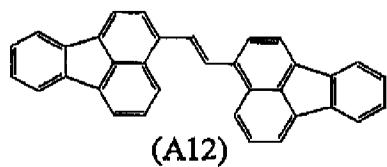
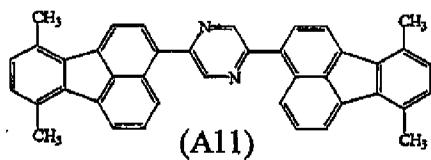


(A10)

[0013]

[Formula

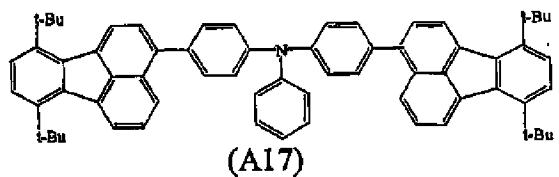
5]



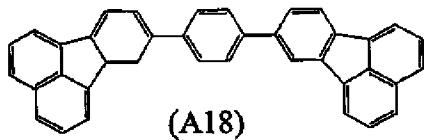
[0014]

[Formula

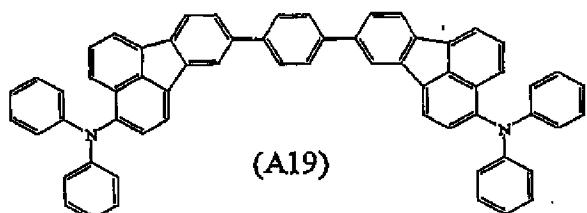
6]



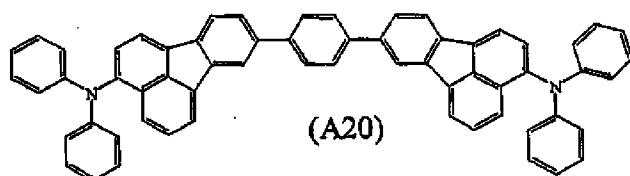
(A17)



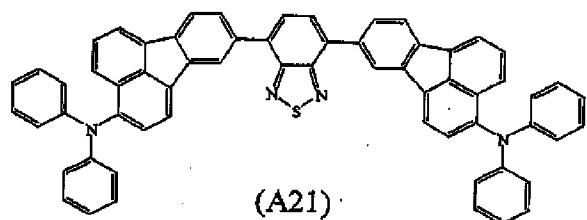
(A18)



(A19)



(A20)

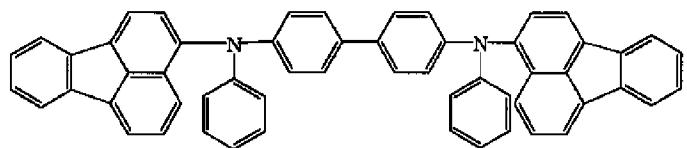


(A21)

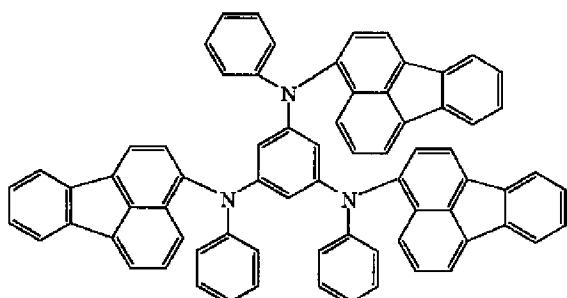
[0015]

[Formula

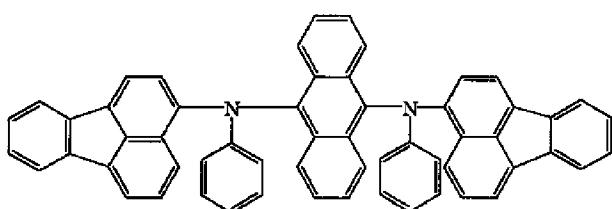
7]



(A 2 2)



(A 2 3)



(A 2 4)

[0016]The organic EL device of this invention is an element in which the monolayer or the multilayer organic compound film was formed between the anode and the negative pole. In the case of the monolayer type, the luminous layer is provided between the anode and the negative pole. A luminous layer contains a luminescent material, and in order even for a luminescent material to

make the electron hole which was poured in from the anode in addition to it, or the electron poured in from the negative pole convey, it may contain hole-injection material or electron injection material. However, as for a luminescent material, it is preferred to have very high fluorescence amount child efficiency, high electron hole transport capacity, and electron transportation capability, and to form a uniform thin film. A multilayer type organic EL device has some which were laminated by the multilayered constitution of (the anode / hole injection layer / luminous layer / negative pole), (the anode / luminous layer / electronic injection layer / negative pole), and (the anode / hole injection layer / luminous layer / electronic injection layer / negative pole).

[0017]In addition to a new hydrocarbon compound of this invention, further publicly known luminescent material, doping materials, hole-injection material, and electron injection material can also be used for a luminous layer if needed.

As desirable directions of this new hydrocarbon compound, it adds by 0.5 to 50 % of the weight of concentration in a layer of either a luminous layer, an electronic injection layer, an electron hole transporting bed or a hole injection layer. They are 1 to 20 % of the weight of concentration still more preferably. The organic EL device can prevent a fall of luminosity by quenching, or a life by using

multilayer structure. It can be used if necessary combining a luminescent material, other doping materials, hole-injection material, or electron injection material. Improvement in light emitting luminance or luminous efficiency, and red and white luminescence can also be obtained with other doping materials. A hole injection layer, a luminous layer, and an electronic injection layer may be formed of lamination more than a bilayer, respectively. In the case of a hole injection layer, in that case, a layer which receives an electron hole for a layer which pours in an electron hole from an electrode from a hole injection layer and a hole injection layer, and conveys an electron hole to a luminous layer is called an electron hole transporting bed. Similarly, in the case of an electronic injection layer, a layer which receives an electron for a layer which pours in an electron from an electrode from an electronic injection layer and an electronic injection layer, and conveys an electron to a luminous layer is called an electron transport layer. These each class is used by each factor, such as adhesion with an energy level of material, heat resistance, an organic compound film, or a metal electrode, choosing it.

[0018]As a luminescent material or a host material which can be used for an organic compound film with said new hydrocarbon compound, There is

condensed multi-ring aromatic series, for example, anthracene, naphthalene, phenanthrene, pyrene, tetracene, pentacene, coronene, a chrysene, fluorescein, perylene, rubrene, and those derivatives exist. Non [phtalo perylene naphthalo perylene, and peri non, / phtalo peri], Naphthalo peri non, diphenylbutadiene, tetraphenylbutadiene, A coumarin, oxadiazole, aldazine, screw benzo KISAZORIN, Screw styryl, pyrazine, a cyclopentadiene, a quinoline metal complex, An aminoquinoline metal complex, a benzoquinoline metal complex, imine, diphenylethylene, Although vinylanthracene, diaminocarbazole, Piran, thiopyran, poly methine, merocyanine, an imidazole chelation oxy NOIDO compound, Quinacridone, rubrene, a stilbene series derivative, a fluorochrome, etc. are mentioned, it is not limited to these.

[0019]a compound which has the capability to convey an electron hole, as a hole-injection material, has the hole-injection effect outstanding to the hole-injection effect, a luminous layer, or a luminescent material from the anode, and prevented movement into an electronic injection layer or electron injection material of an exciton generated by a luminous layer, and was excellent in thin-film-forming capability is preferred. Specifically A phthalocyanine derivative, a naphthalocyanine derivative, a porphyrin derivative, Oxazol, oxadiazole,

triazole, imidazole, imidazolone, Imidazolethione, pyrazoline, a pyrazolone, tetrahydro imidazole, Oxazol, oxadiazole, hydrazone, acyl hydrazone, A poly aryl alkane, a stilbene, butadiene, a benzidine type triphenylamine, a styryl amine type triphenylamine, a diamine type triphenylamine, etc., Although polymer materials, such as those derivatives and a polyvinyl carbazole, polysilane, and a conductive polymer, are mentioned, it is not limited to these.

[0020]A still more effective hole-injection material in hole-injection material which can be used in an organic EL device of this invention is the third class of aromatic amine derivative, or a phthalocyanine derivative. An example of the third class of aromatic amine derivative A triphenylamine, trityl amine, Toly diphenylamine, N,N'-diphenyl-N,N'-(3-methylphenyl)-1,1'-biphenyl 4,4'-diamine, N,N,N',N'-(4-methylphenyl)-1,1'-phenyl-4,4'-diamine,

N,N,N',N'-(4-methylphenyl)-1,1'-biphenyl 4,4'-diamine,

N,N'-diphenyl-N,N'-dinaphthyl 1,1'-biphenyl 4,4'-diamine,

N,N'-(methylphenyl)-N,N' -(4-n-butylphenyl)- Phenanthrene 9,10-diamine,

Although it is oligomer or polymer with these the third class of aromatic amine skeleton, such as N,N-bis(4-di-4-tolylamino phenyl)-4-phenyl-cyclohexane, it is not limited to these. An example of a phthalocyanine (Pc) derivative H₂ Pc, CuPc,

CoPc, NiPc, ZnPc, PdPc, FePc, MnPc, CIAIPc, Although it is a phthalocyanine derivative and naphthalocyanine derivatives, such as ClGaPc, ClInPc, ClSnPc, Cl₂SiPc, (HO) AlPc, (HO) GaPc, VOPc, TiOPc, MoOPc, and GaPc-O-GaPc, It is not limited to these.

[0021]a compound which has the capability to convey an electron, as an electron injection material, has the electron injection effect outstanding to the electron injection effect, a luminous layer, or a luminescent material from the negative pole, and prevented movement to a hole injection layer of an exciton generated by a luminous layer, and was excellent in thin-film-forming capability is preferred. Specifically Fluorenone, anthra quinodimethane, diphenoquinone, Although thiopyrandioxide, oxazol, oxadiazole, triazole, imidazole, perylene tetracarboxylic acid, FUREORENIRIDEN methane, anthra quinodimethane, Antron, etc. and those derivatives are mentioned, it is not limited to these.

Electric charge pouring nature can also be raised by adding an electronic acceptance substance into hole-injection material, and adding an electron-donative substance into electron injection material.

[0022]In an organic EL device of this invention, a still more effective electron injection material is a metal complex compound or a nitrogen-containing five

membered ring derivative. An example of a metal complex compound

8-hydroxyquinolinate lithium, Bis(8-hydroxyquinolinate)zinc,

bis(8-hydroxyquinolinate)copper, Bis(8-hydroxyquinolinate)manganese,

tris(8-hydroxyquinolinate)aluminium, Tris(2-methyl-8-hydroxyquinolinate)

aluminum, Tris(8-hydroxyquinolinate) gallium, bis(10-hydroxybenzo [h]

quinolinate)beryllium, Bis(10-hydroxybenzo [h] quinolinate)zinc,

bis(2-methyl-8-quinolinate)chlorogallium, Although

bis(2-methyl-8-quinolinate)(o-cresolate) gallium,

bis(2-methyl-8-quinolinate)(1-naphtho RATO) aluminum,

bis(2-methyl-8-quinolinate)(2-naphtho RATO) gallium, etc. are mentioned, It is

not limited to these.

[0023]A nitrogen-containing 5 member derivative has oxazol, a thiazole,

oxadiazole, thiadiazole, or a preferred triazole derivative. Specifically

2,5-bis(1-phenyl)-1,3,4-oxazol, The dimethyl POPOP, a

2,5-bis(1-phenyl)-1,3,4-thiazole, 2,5-bis(1-phenyl)-1,3,4-oxadiazole, 2

-(4'-tert-butylphenyl)-5-(4"-biphenyl) 1, 3, 4-oxadiazole,

2,5-bis(1-naphthyl)-1,3,4-oxadiazole, 1,4-bis[2- (5-phenyl oxadiazolyl)] benzene,

A 1,4-screw [2-(5-phenyl oxadiazolyl)-4-tert-butylbenzene], 2

- (4'-tert-butylphenyl)-5-(4"-biphenyl) -1, 3, 4-thiadiazole,

2,5-bis(1-naphthyl)-1,3,4-thiadiazole, 1,4-bis[2- (5-phenyl thiadiazolyl)] benzene,

2 -(4'-tert-butylphenyl)-5-(4"-biphenyl) Although -1,3,4-triazole,

2,5-bis(1-naphthyl)-1,3,4-triazole, 1,4-bis[2- (5-phenyl triazoryl)] benzene, etc.

are mentioned, It is not limited to these. In this invention, an inorganic compound layer may be provided between a luminous layer and an electrode for improvement in electric charge injection. As such an inorganic compound layer, there are alkali metal compounds (fluoride, an oxide, etc.), an alkaline earth metal compound, etc., and LiF, Li₂O, BaO, SrO, BaF₂, SrF₂, etc. are specifically mentioned.

[0024]As a conductive material used for the anode of an organic EL device, A thing with a bigger work function than 4 eV is suitable, and Carbon, aluminum, Organic conductive resin, such as metal oxide, such as tin oxide, indium oxide, etc. which are used for those alloys, such as vanadium, iron, cobalt, nickel, tungsten, silver, gold, platinum, and palladium, an ITO board, and a NESA board, and also a polythiophene, and polypyrrole, is used. Although what has a work function smaller than 4 eV as a conductive substance used for the negative pole is suitable and those alloys, such as magnesium, calcium, tin, lead, titanium,

yttrium, lithium, a ruthenium, manganese, and aluminum, are used, It is not limited to these. As an alloy, although magnesium/silver, magnesium/indium, lithium/aluminum, etc. are mentioned as an example of representation, it is not limited to these. A ratio of an alloy is controlled by temperature of a deposition source, atmosphere, a degree of vacuum, etc., and is chosen as a suitable ratio. As long as the anode and the negative pole have necessity, they may be formed of lamination more than a bilayer.

[0025]As for at least one field, in order to make light emit efficiently in an organic EL device, it is desirable to make it transparent enough in a luminous wavelength field of an element. Transparent thing of a substrate is desirable. The above-mentioned conductive material is used for a transparent electrode, and it sets it up so that predetermined translucency may be secured by methods, such as vacuum evaporation and sputtering. As for an electrode of a light-emitting surface, it is desirable to make light transmittance not less than 10%. If a substrate has mechanical and thermal intensity and it has transparency, it is not limited, but a glass substrate and a transparent resin film are mentioned.

As a transparent resin film, polyethylene, an ethylene-vinylacetate copolymer, An ethylene-vinylalcohol copolymer, polypropylene, polystyrene,

Polymethylmethacrylate, polyvinyl chloride, polyvinyl alcohol, A polyvinyl butyral, nylon, a polyether ether ketone, poly SARUHON, Polyether sulphone, a tetrafluoroethylene perfluoroalkyl vinyl ether copolymer, Polyvinyl fluoride, a tetrafluoroethylene ethylenic copolymer, A tetrafluoroethylene hexafluoropropylene copolymer, polychlorotrifluoroethylene resin, polyvinylidene fluoride, polyester, polycarbonate, polyurethane, polyimide, polyether imide, polyimide, polypropylene, etc. are mentioned.

[0026]The organic EL device of this invention can provide a protective layer on the surface of an element for improvement of stability to temperature, humidity, atmosphere, etc., or can also protect the whole element with a silicone oil, resin, etc. The formation of each class of an organic EL device can apply which method of the wet forming-membranes methods, such as the dry type forming-membranes methods, such as vacuum deposition, sputtering, plasma, and ion plating, spin coating, dipping, and flow coating. Although thickness in particular is not limited, it is necessary to set it as suitable thickness. If thickness is too thick, in order to obtain fixed optical power, big impressed electromotive force will be needed and efficiency will worsen. If thickness is too thin, even if a pinhole etc. will occur and it will impress an electric field, sufficient light emitting

luminance is not obtained. The usual thickness has the still more preferred range of 0.2 micrometer from 10 nm, although the range of 10 micrometers is suitable from 5 nm.

[0027]The solvent may be any, although suitable solvents, such as ethanol, chloroform, a tetrahydrofuran, and dioxane, are made to dissolve or distribute material which forms each class in the case of the wet forming-membranes method and a thin film is formed. Also in which organic thin film layer, suitable resin and an additive agent may be used on a membrane formation disposition for membranous pinhole prevention etc. As possible resin of use, polystyrene, polycarbonate, polyarylate, Polyester, polyamide, polyurethane, polysulfone, polymethylmethacrylate, Conductive resin, such as photo electroconductive polymer, such as insulating resin, such as polymethyl acrylate and cellulose, and those copolymers, poly-N-vinylcarbazole, and polysilane, a polythiophene, and polypyrrole, can be mentioned. An antioxidant, an ultraviolet ray absorbent, a plasticizer, etc. can be mentioned as an additive agent.

[0028]An organic EL device of this invention can be used for light sources, such as a back light of plane emitters, such as a flat-panel display of a flat TV, a copying machine, a printer, and a liquid crystal display, or instruments, the

plotting board, a beacon light, etc., for example.

[0029]

[Example]Hereafter, this invention is explained still in detail based on a synthetic

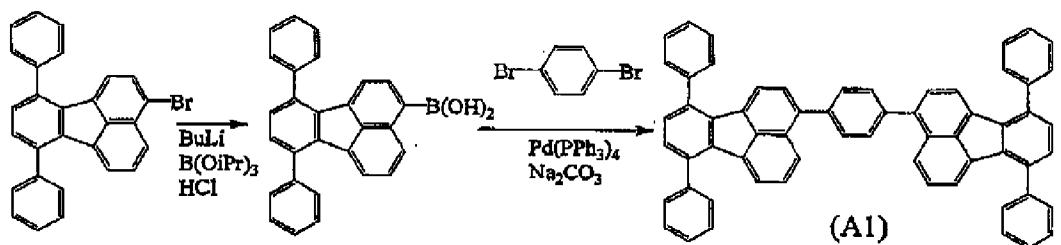
example and an example.

The synthetic example 1 (compound (A1))

The compound (A1) was manufactured according to the reaction path shown below.

[Formula

8]



[0030](1) 3-bromo-7,10-diphenylfluoranthene (25 g, 58mmol) was melted in absolute ether (150 ml) under the synthetic argon atmosphere of a 7,10-diphenylfluoranthene 3-boron acid, and it cooled at -35 ** by dry ice / methanol bath. n-butyl lithium / hexane solution (1.50 mol/l, 43 ml, 65mmol) was dropped at this, and it stirred at -20 ** for 1 hour. cooling a reaction mixture at -70 ** -- the absolute ether solution (30 ml) of a triisopropoxy silane (37 ml, 0.16

mol, 2.8eq) -- in addition, at -65 **, it stirred at the room temperature for 2 hours for 1 hour, and was neglected overnight. The hydrochloric acid aqueous solution (150 ml) was added to the reaction mixture 10%, the organic layer was isolated preparatively after 1-hour churning at the room temperature, with the saturation salt solution (50 ml), it dried with washing and anhydrous magnesium sulfate, the solid produced by carrying out solvent distilling off was washed by hexane, and the white solid (19 g, 48mmol, 83% of yield) was obtained.

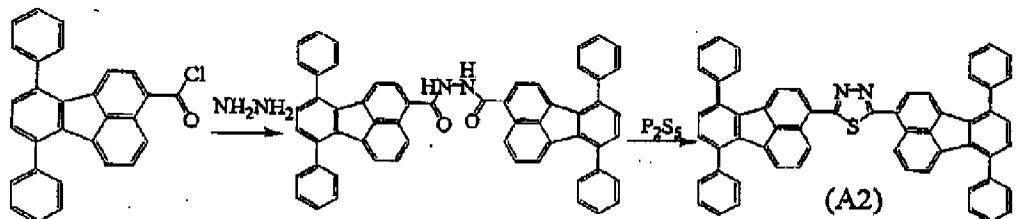
[0031](2) Under the synthetic argon atmosphere of 1,4'-bis(3- (7,10-diphenyl fluoran thenyl)benzene (A1), A 7,10-diphenylfluoranthene 3-boron acid (18 g, 45mmol, 2.8eq), 1,4-dibromobenzene (3.8 g, 16mmol) and tetrakis (triphenyl phosphine) palladium (0) (0.37 g, 0.32mmol, 2%Pd) are suspended in toluene (200 ml), Sodium carbonate solution (10 g, 94mmol, 5.8 eq/48 ml) was added, and it flowed back for 10 hours, and was neglected overnight. The ** exception carried out the reaction mixture, water, methanol, and acetone washed, the gray solid (11 g, 14mmol, 88% of yield) was obtained, and the yellow solid (9.1 g, 11mmol) was further obtained by sublimation refining. As for the obtained solid, it was checked by measurement of a 400MHzNMR spectrum, a proton NMR spectrum, and FD-MS (field DISOPUSHON mass spectrum) that it is a

compound (A1).

[0032]The synthetic example 2 (compound (A2))

The compound (A2) was manufactured according to the reaction path shown below.

[Formula 9]



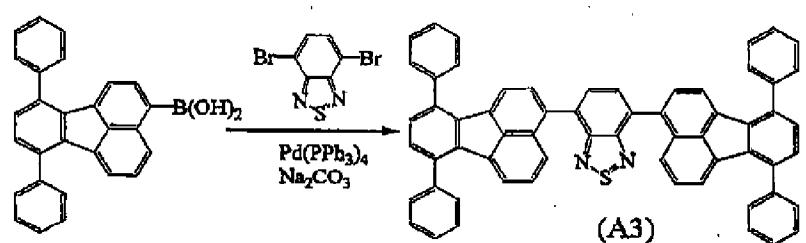
[0033](1) In the synthetic flask of N,N'-bis(7,10-diphenyl-3-fluoran TOIRU)hydrazine, Hydrazine sulfate (2.2 g, 17mmol) is added to distilled water (40 ml), and it agitates, cooling the solution which melted sodium hydroxide (1.5 g, 38mmol) further by an ice bath. Next, sodium hydroxide (1.6 g, 40mmol) was melted in distilled water (30 ml), and it was dropped, having covered the solution which added 7,10-diphenyl-3-fluoran TOIRU chloride (15 g, 36mmol) into said flask for 1 hour. It filtered and the white residue was obtained, after stirring at 10 ** for 2 hours. Hydrous acetone washed this residue 50%, it filtered and dried again, and the white solid (8.7 g, 11mmol, 65% of yield) was obtained.

[0034](2) Under the synthetic argon atmosphere of 2,5-bis(3- (7,10-diphenyl) fluoran thenyl)-1,3,4-thiadiazole (A2), FUOSUFORA pentasulfide (3.2 g, 14mmol) and N,N'-bis(7,10-diphenyl-3-fluoran TOIRU)hydrazine (8.7 g, 11mmol) were added to anhydrous chloroform (50 ml), and it flowed back for 40 hours. Then, the potassium hydroxide solution (50 ml) washed twice [further] with distilled water after 2 times washing 10%, it dried with magnesium sulfate, the solvent was distilled off, column chromatography refined, and the yellow crystal (4.0 g, 5.0mmol, 45% of yield) was obtained. As for the obtained crystal, it was checked by measurement of a 400MHzNMR spectrum, a proton NMR spectrum, and FD-MS that it is a compound (A2).

[0035]The synthetic example 3 (compound (A3))
The compound (A3) was manufactured according to the reaction path shown below.

[Formula

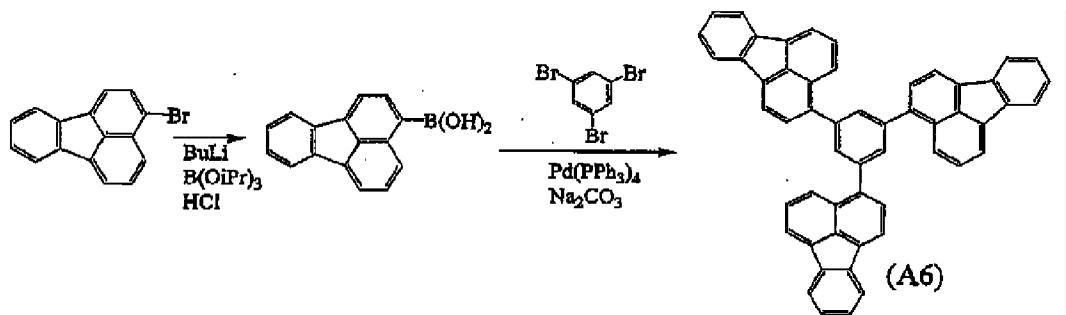
10]



[0036](1) Under the synthetic argon atmosphere of 4,7-bis(3- (7,10-diphenyl) fluoran phenyl)-2,1,3-benzothiazole (A3), A 7,10-diphenylfluoranthene 3-boron acid (18 g, 45mmol, 2.8eq), 4,7-dibromo-2,1,3-benzothiazole (4.7 g, 16mmol), Tetrakis (triphenyl phosphine) palladium (0) (0.37 g-0.32mmol, 2%Pd) was suspended in toluene (200 ml), and sodium carbonate solution (10 g, 94mmol, 5.8 eq/48 ml) was added, and it flowed back for 10 hours, and was neglected overnight. The ** exception carried out the reaction mixture, water, methanol, and acetone washed, column chromatography refined, and the bright yellow solid (9.7 g, 12mmol, 72% of yield) was obtained. As for the obtained solid, it was checked by measurement of a 400MHzNMR spectrum, a proton NMR spectrum, and FD-MS that it is a compound (A3).

[0037]synthetic example 4 (compound (A6))

The compound (A6) was manufactured according to the reaction path shown below.



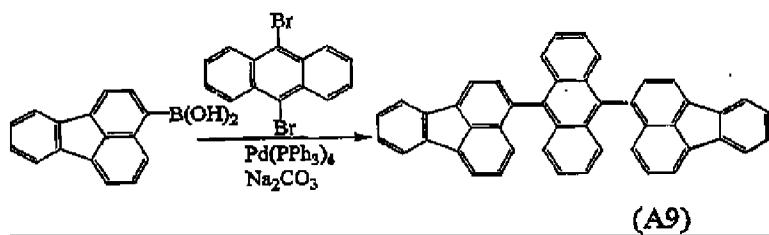
[0038](1) 3-bromofluoranthene (15 g, 53mmol) was melted in absolute ether (120 ml) under the synthetic argon atmosphere of a fluoranthene 3-boron acid, and it cooled at -35 ** by dry ice / methanol bath. n-butyl lithium / hexane solution (1.50 mol/l, 38 ml, 58mmol) was dropped at this, and it stirred at -20 ** for 1 hour. cooling a reaction mixture at -70 ** -- the absolute ether solution (25 ml) of a triisopropoxy silane (28 ml, 0.12 mol, 2.3eq) -- in addition, at -65 **, it stirred at the room temperature for 2 hours for 1 hour, and was neglected overnight. a reaction mixture -- a 10% hydrochloric acid aqueous solution (120 ml) -- in addition, the organic layer was isolated preparatively after 1-hour churning at the room temperature, with the saturation salt solution (40 ml), it dried with washing and anhydrous magnesium sulfate, the solid produced by carrying out solvent distilling off was washed by hexane, and the white solid (11 g, 45mmol, 85% of yield) was obtained.

[0039](2) Under the synthetic argon atmosphere of 1,3,5-tris(3-fluoran thenyl) benzene (A6), A fluoranthene 3-boron acid (10 g, 41mmol, 3.8eq), 1,3,5-tribromobenzene (3.5 g, 11mmol), tetrakis (triphenyl phosphine) palladium (0), and (0.29 g-0.25mmol, 2.3%Pd) are suspended in toluene (150 ml), Sodium carbonate solution (9 g, 86mmol, 7.8 eq/43 ml) was added, and it flowed back for 10 hours, and was neglected overnight. The ** exception carried out the reaction mixture, water, methanol, and acetone washed, the gray solid (6.5 g, 9.6mmol, 87% of yield) was obtained, and the yellow solid (4.3 g, 6.4mmol) was further obtained by sublimation refining. As for the obtained solid, it was checked by measurement of a 400MHzNMR spectrum, a proton NMR spectrum, and FD-MS that it is a compound (A6).

[0040]The synthetic example 5 (compound (A9))

The compound (A9) was manufactured according to the reaction path shown below.

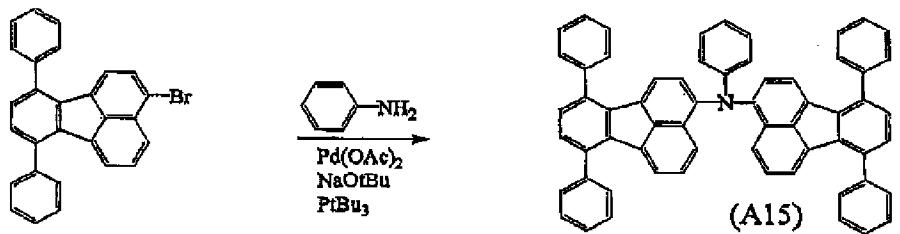
[Formula 12]



[0041](1) Under the synthetic argon atmosphere of 9,10-bis(3-fluoranthenyl)anthracene (A9), A fluoranthene 3-boron acid (10 g, 41mmol, 2.2eq), 9,10-dibromoanthracene (6.3 g, 19mmol), tetrakis (triphenyl phosphine) palladium (0), and (0.44 g-0.38mmol, 2%Pd) are suspended in toluene (150 ml). Sodium carbonate solution (8.6 g, 82mmol, 4.4 eq/40 ml) was added, and it flowed back for 10 hours, and was neglected overnight. The ** exception carried out the reaction mixture, water, methanol, and acetone washed, the gray solid (10 g, 17mmol, 91% of yield) was obtained, and the yellow solid (8.4 g, 14mmol) was further obtained by sublimation refining. As for the obtained solid, it was checked by measurement of a 400MHzNMR spectrum, a proton NMR spectrum, and FD-MS that it is a compound (A9).

[0042]synthetic example 6 (compound (A15))

The compound (A15) was manufactured according to the reaction path shown below.



[0043](1) Under the synthetic argon atmosphere of N,N'-bis(3- (7,10-diphenyl) fluoran thenyl)aniline (A15), 3-bromo-7,10-diphenylfluoranthene (5 g, 12mmol), Palladium acetate (2) (0.06 g,0.3mmol) tri-t-butylphosphine (0.23 g, 1.1mmol), t-butoxysodium (1.6 g, 16mmol) and aniline (0.5 g, 6mmol) were added to anhydrous toluene (50 ml), and it flowed back after churning at the room temperature for 7 hours for 30 minutes. The ** exception carried out the precipitated crystal, with toluene and water, after washing, reduced pressure drying was carried out and the yellow solid was obtained. Furthermore column chromatography refined and the light yellow solid (4.5 g, 5.7mmol, 96% of yield) was obtained. As for the obtained solid, it was checked by measurement of a 400MHzNMR spectrum, a proton NMR spectrum, and FD-MS that it is a compound (A15).

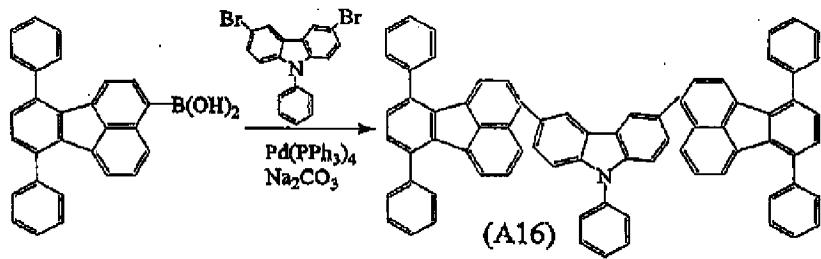
[0044]synthetic example 7 (compound (A16))

The compound (A16) was manufactured according to the reaction path shown

below.

[Formula

14]



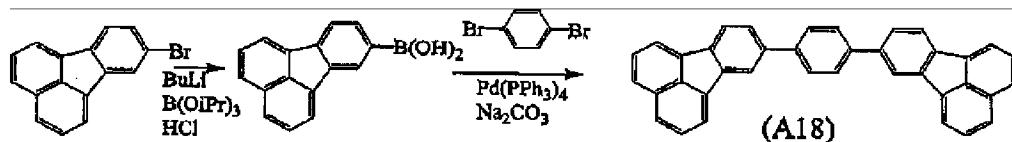
[0045](1) Under the synthetic argon atmosphere of 3,6-bis(3- (7,10-diphenyl) fluoran thenyl)-9-phenyl KAMBAZORU (A16), A 7,10-diphenylfluoranthene 3-boron acid (9 g, 22mmol, 2.4eq), 3,6-dibromo-9-KAMBAZORU (3.7 g, 9.2mmol), Tetrakis (triphenyl phosphine) palladium (0), and (0.21 g-0.18mmol, 2%Pd) were suspended in toluene (100 ml), and sodium carbonate solution (6.9 g, 65mmol, 7.0 eq/33 ml) was added, and it flowed back for 14 hours, and was neglected overnight. The ** exception carried out the reaction mixture, water, methanol, and acetone washed, column chromatography refined, and the light yellow solid (8.1 g, 8.5mmol, 92% of yield) was obtained. As for the obtained solid, it was checked by measurement of a 400MHzNMR spectrum, a proton NMR spectrum, and FD-MS that it is a compound (A16).

[0046]The synthetic example 8 (compound (A18))

The compound (A18) was manufactured according to the reaction path shown below.

[Formula

15]



[0047](1) 8-bromofluoranthene (15 g, 53mmol) was melted in absolute ether (120 ml) under the synthetic argon atmosphere of a fluoranthene 8-boron acid, and it cooled at -35 ** by dry ice / methanol bath. n-butyl lithium / hexane solution (1.50 mol/l, 38 ml, 58mmol) was dropped at this, and it stirred at -20 ** for 1 hour. cooling a reaction mixture at -70 ** -- the absolute ether solution (25 ml) of a triisopropoxy silane (28 ml, 0.12 mol, 2.3eq) -- in addition, at -65 **, it stirred at the room temperature for 2 hours for 1 hour, and was neglected overnight. The hydrochloric acid aqueous solution (120 ml) was added to the reaction mixture 10%, the organic layer was isolated preparatively after 1-hour churning at the room temperature, with the saturation salt solution (40 ml), it dried with washing and anhydrous magnesium sulfate, the solid produced by carrying out solvent distilling off was washed by hexane, and the white solid (12 g, 49mmol, 92% of

yield) was obtained.

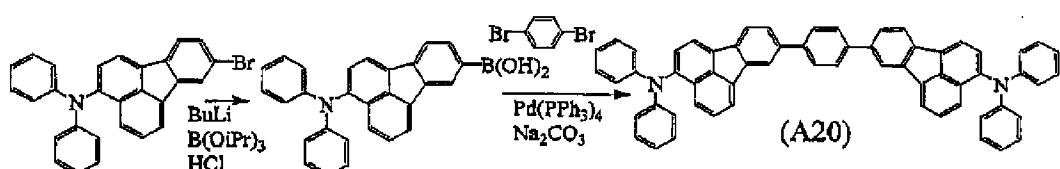
[0048](2) Under the synthetic argon atmosphere of 1,4-bis(8-fluoranthenyl)benzene (A18), A fluoranthene 8-boron acid (9 g, 37mmol, 2.3eq), 1,4-dibromobenzene (3.8 g, 16mmol), tetrakis (triphenyl phosphine) palladium (0), and (0.37 g-0.32mmol, 2%Pd) are suspended in toluene (200 ml), Sodium carbonate solution (10 g, 94mmol, 5.8 eq/48 ml) was added, and it flowed back for 10 hours, and was neglected overnight. The ** exception carried out the reaction mixture, water, methanol, and acetone washed, the gray solid (7.4 g, 15mmol, 94% of yield) was obtained, and the light yellow solid (6.0 g, 12mmol) was further obtained by sublimation refining. As for the obtained solid, it was checked by measurement of a 400MHzNMR spectrum, a proton NMR spectrum, and FD-MS that it is a compound (A18).

[0049]The synthetic example 9 (compound (A20))

The compound (A20) was manufactured according to the reaction path shown below.

[Formula

16]



[0050](1) 3-N,N'-diphenylamino fluoranthene (12 g, 27mmol) was melted in absolute ether (100 ml) under the synthetic argon atmosphere of a 3-N,N'-diphenylamino fluoranthene 8-boron acid, and it cooled at -35 ** by dry ice / methanol bath. n-butyl lithium / hexane solution (1.50 mol/l, 19 ml, 29mmol) was dropped at this, and it stirred at -20 ** for 1 hour. cooling a reaction mixture at -70 ** -- the absolute ether solution (20 ml) of a triisopropoxy silane (14 ml, 60mmol, 2.2eq) -- in addition, at -65 **, it stirred at the room temperature for 3 hours for 1 hour, and was neglected overnight. The hydrochloric acid aqueous solution (100 ml) was added to the reaction mixture 10%, the organic layer was isolated preparatively after 1-hour churning at the room temperature, with the saturation salt solution (36 ml), it dried with washing and anhydrous magnesium sulfate, the solid produced by carrying out solvent distilling off was washed by hexane, and the white solid (9.2 g, 23mmol, 85% of yield) was obtained.

[0051](2) Under the synthetic argon atmosphere of 1,4-bis(8-(3-N,N'-diphenylamino) fluoran thenyl)benzene (A20), A 3-N,N'-diphenylamino fluoranthene 8-boron acid (9 g, 22mmol, 2.2eq), 1,4-dibromobenzene (2.4 g, 10mmol), tetrakis (triphenyl phosphine) palladium

(0), and (0.23 g-0.20mmol, 2%Pd) are suspended in toluene (150 ml), Sodium carbonate solution (6.4 g, 60mmol, 6.0 eq/31 ml) was added, and it flowed back for 12 hours, and was neglected overnight. The ** exception carried out the reaction mixture, water, methanol, and acetone washed, the gray solid (6.9 g, 8.5mmol, 85% of yield) was obtained, and the light yellow solid (5.2 g, 6.4mmol) was further obtained by sublimation refining. As for the obtained solid, it was checked by measurement of a 400MHzNMR spectrum, a proton NMR spectrum, and FD-MS that it is a compound (A20).

[0052]After cleaning ultrasonically the glass substrate with an ITO transparent electrode of 75 mm x 125 mm of examples x1.1-mm thickness (made by a JIOMA tick company) for 5 minutes in isopropyl alcohol, UV ozone wash was performed for 30 minutes. The substrate holder of a vacuum evaporator is equipped with the glass substrate with a transparent electrode line after washing, As said transparent electrode is covered on the field of the side in which the transparent electrode line is formed first, it is a N,N' - bis(N,N' - diphenyl-4-aminophenyl)-N,N'-diphenyl-4,4' - diamino-1,1'-biphenyl film (hereafter) of 60 nm of thickness. TPD232 film was formed. This TPD232 film functions as a hole injection layer. Next, it is 4,4' of 20 nm of thickness on

TPD232 film. - screw [N-(1-naphthyl)-N-phenylamino] biphenyl film (henceforth, NPD film) was formed. This NPD film functions as an electron hole transporting bed. On the NPD film, the above-mentioned compound (A1) of 40 nm of thickness was vapor-deposited, and membranes were formed. This film functions as a luminous layer. The tris (eight quinolinol) aluminum film (henceforth, Alq film) of 20 nm of thickness was formed on this film. This Alq film functions as an electronic injection layer. next -- Li (the source of Li: made by a SAESU getter company), and Alq -- duality -- it was made to vapor-deposit and the Alq:Li film was formed as an electronic injection layer (negative pole). On this Alq:Li film, metal aluminum was made to vapor-deposit, metal cathode was formed, and the organic EL device was produced. As for this element, the blue light of light-emitting-luminance 150 cd/m², maximum light-emitting-luminance 43000 cd/m², and luminous efficiency 3.0 cd/A was obtained with the direct current voltage 6V.

[0053]Similarly, except for having used the compound shown in Table 1 instead of a compound (A1) in two to example 8 Example 1, produce an organic EL device, and with the direct current voltage 6V. Light emitting luminance, luminous efficiency, and glass transition temperature are measured, the

luminescent color is observed, and it is 500 under the temperature of 85 ** as a heat-resistant test further. After carrying out time preservation, the luminescence percentage reduction from initial luminance was measured. The result is shown in Table 1.

[0054]Similarly, in comparative example 1 Example 1, produce an organic EL device except for having used 7,10-diphenylfluoranthene (DPF) instead of a compound (A1), and with the direct current voltage 5V. Light emitting luminance and luminous efficiency are measured, the luminescent color is observed, and it is 500 under the temperature of 85 ** as a heat-resistant test further. After carrying out time preservation, the luminescence percentage reduction from initial luminance was measured. The result is shown in Table 1.

[0055]

[Table 1]

表 1

	化合物の種類	電圧(V)	発光輝度(cd/m ²)	発光効率(cd/A)	発光色	発光減少率(%)	ガラス転移温度(%)
実施例 2	(A2)	6	130	4.5	青緑	2	>100
実施例 3	(A3)	6	131	3.7	緑	5	>100
実施例 4	(A6)	6	155	4.7	青	1	>100
実施例 5	(A9)	6	310	5.8	青	-5	>100
実施例 6	(A15)	6	320	4.1	青	-3	>100
実施例 7	(A16)	6	260	6.0	青	5	>100
実施例 8	(A18)	6	213	4.8	青	2	>100
比較例 1	DPF	5	150	2.5	青緑	短絡した	<80

[0056]As shown in Table 1, the organic EL device using the new hydrocarbon compound of this invention has high luminous efficiency, and is excellent in heat resistance. This is for the glass transition temperature of the new hydrocarbon compound of this invention to hold more than 100 ** and the fluorescence covering [it is high and] blue - green regions.

[0057]After cleaning ultrasonically the glass substrate with an ITO transparent electrode of 75 mm x 925 mm of examples x1.1-mm thickness (made by a JIOMA tick company) for 5 minutes in isopropyl alcohol, UV ozone wash was performed for 30 minutes. The substrate holder of the vacuum evaporator was equipped with the glass substrate with a transparent electrode line after washing, and on the field of the side in which the transparent electrode line is formed first,

as said transparent electrode was covered, TPD232 film of 60 nm of thickness was formed. This TPD232 film functions as a hole injection layer. Next, the film which becomes 20 nm of thickness from the above-mentioned compound (A15) was formed on the TPD232 film. This (A15) film functions as an electron hole transporting bed. On the film (A15), Alq of 40 nm of thickness and rubrene were vapor-deposited by the weight ratio 30:1, and membranes were formed. This film functions as a luminous layer. The Alq film of 20 nm of thickness was formed on this film. This Alq film functions as an electronic injection layer. next -- Li (the source of Li: made by a SAESU getter company), and Alq -- duality -- it was made to vapor-deposit and the Alq:Li film was formed as an electronic injection layer (negative pole). On this Alq:Li film, metal aluminum was made to vapor-deposit, metal cathode was formed, and the organic EL device was produced. The yellow light of the luminous efficiency in which this element is very as high at the direct current voltage 6V as light-emitting-luminance 150 cd/m², maximum light-emitting-luminance ² of 73000cds/m, and luminous efficiency 10.0 cd/A was obtained. When initial luminance was made into 1000 cd/m², the constant current drive was carried out and life test was done, it was very as long as reduction-by-half life 6200 hours. From the above thing, the new

hydrocarbon compound of this invention is extremely excellent as a compound

of electron hole transportability.

[0058]After cleaning ultrasonically the glass substrate with an ITO transparent

electrode of 75 mm x 1025 mm of examples x1.1-mm thickness (made by a

JIOMA tick company) for 5 minutes in isopropyl alcohol, UV ozone wash was

performed for 30 minutes. The substrate holder of the vacuum evaporator was

equipped with the glass substrate with a transparent electrode line after washing,

and on the field of the side in which the transparent electrode line is formed first,

as said transparent electrode was covered, TPD232 film of 60 nm of thickness

was formed. This TPD232 film functions as a hole injection layer. Next, the NPD

film was formed on the TPD232 film at 20 nm of thickness. This NPD film

functions as an electron hole transporting bed. On the NPD film, Alq of 40 nm of

thickness and rubrene were vapor-deposited by the weight ratio 30:1, and

membranes were formed. This film functions as a luminous layer. The film which

consists of the above-mentioned compound (A3) of 20 nm of thickness on this

film was formed. This (A3) film functions as an electronic injection layer. Then,

the LiF film of 1 nm of thickness was formed as an inorganic compound film. On

this LiF film, metal aluminum was made to vapor-deposit, metal cathode was

formed, and the organic EL device was produced. The yellow light of the luminous efficiency in which this element is very as high at the direct current voltage 5.5V as light-emitting-luminance 250 cd/m², maximum light-emitting-luminance ² of 93000cds/m, and luminous efficiency 12.0 cd/A was obtained. When initial luminance was made into 1000 cd/m², the constant current drive was carried out and life test was done, it was very as long as reduction-by-half life 5000 hours. From the above thing, the new hydrocarbon compound of this invention is extremely excellent as a compound of electron transport property.

[0059]In example 11 Example 10, the organic EL device in which the hybrid model electronic injection layer of the electron-transport-property compound and reducing compound which mixed Cs (caesium) with the above-mentioned compound (A3) by the mole ratio 1:1 was formed was produced instead of forming the inorganic compound film of a LiF film. This element became light-emitting-luminance ² of 1020cds/m with the low voltage drive further with the direct current voltage 4.5V, and the yellow light of maximum light-emitting-luminance 123000 cd/m², luminous efficiency 13.0 cd/A, and very high luminous efficiency was obtained. When initial luminance was made into

1000 cd/m², the constant current drive was carried out and life test was done, it was very as long as reduction-by-half life 5800 hours.

[0060]

[Effect of the Invention]As mentioned above, as explained in detail, the organic electroluminescence element using the new hydrocarbon compound of this invention has high heat resistance, luminous efficiency is also high, and it is still longer lasting. For this reason, the organic electroluminescence element of this invention is useful as light sources, such as a plane emitter of wall tapestry television, and a back light of a display.

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-69044

(P2002-69044A)

(43) 公開日 平成14年3月8日(2002.3.8)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード*(参考)
C 07 C 211/61		C 07 C 211/61	3 K 0 0 7
13/62		13/62	4 H 0 0 6
C 09 K 11/06	6 1 0	C 09 K 11/06	6 1 0
	6 2 0		6 2 0
	6 4 5		6 4 5

審査請求 未請求 請求項の数 7 O.L. (全 16 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2000-255141(P2000-255141)	(71) 出願人 000183646 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(22) 出願日	平成12年8月25日(2000.8.25)	(72) 発明者 細川 地潮 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(72) 発明者 岩隅 俊裕 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地
		(74) 代理人 100078732 弁理士 大谷 保
		Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB06 AB11 CA01 CB01 DA01 DB03 EB00 4H006 AA01 AA03 BU48 EA37

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

【課題】 耐熱性が高く、高発光効率の有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する新規炭化水素化合物を提供する。

【解決手段】 下記一般式(1)で表される新規炭化水素化合物、並びに少なくとも発光層を有する有機化合物膜の少なくとも一層が該新規炭化水素化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子である。

X_n-Ar₁ . . . (1)

(式中、Ar₁は、置換もしくは未置換の炭素原子数6～40の芳香族環基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～40のアリールアミノ基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～60のジアミノアリール基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～60のトリアミノアリール基、置換もしくは未置換の炭素原子数3～40の複素環基又は置換もしくは未置換のエテニレン、Xはフルオランタン構造を有する一価の基、nは2～4の整数である。)

【特許請求の範囲】

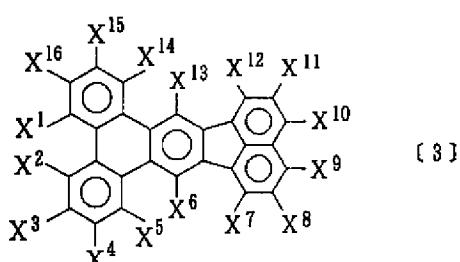
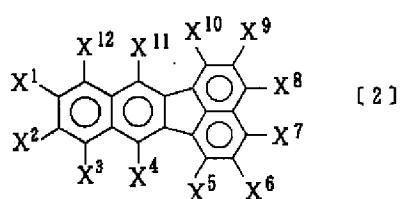
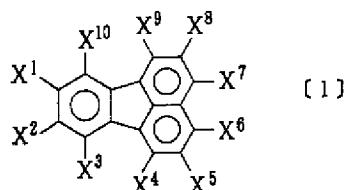
【請求項1】 下記一般式(1)で表される新規炭化水素化合物。



(式中、 A_{r_1} は、置換もしくは未置換の炭素原子数6～40の芳香族環基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～40のアリールアミノ基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～60のジアミノアリール基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～60のトリアミノアリール基、置換もしくは未置換の炭素原子数3～40の複素環基又は置換もしくは未置換のエテニレン、Xはフルオランテン構造を有する一価の基、nは2～4の整数である。)

【請求項2】 前記Xが下記一般式〔1〕～〔3〕に示す構造を有する化合物の一価の基であることを特徴とする請求項1に記載の新規炭化水素化合物。

【化1】



〔一般式〔1〕～〔3〕式中、 X^1 ～ X^{16} は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルキル基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルコキシ基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルキルチオ基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニル基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニルオキシ基、置換もしくは未置換の直

鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニルチオ基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキル基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキルオキシ基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキルチオ基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～20のアリール基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～20のアリールオキシ基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～20のアリールチオ基、置換もしくは未置換の炭素原子数2～30のアミノ基、シアノ基、水酸基、 $-COOR^1$ 基(基中、 R^1 は水素原子、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルキル基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニル基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキル基、又は置換もしくは未置換の炭素原子数6～30のアリール基を表す)、 $-COR^2$ 基(基中、 R^2 は水素原子、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルキル基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニル基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキル基、又はアミノ基を表す)、 $-OCOR^3$ 基(基中、 R^3 は、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルキル基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニル基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキル基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～30のアリール基を表す)を表し、さらに X^1 ～ X^{16} のうち、隣接する基及び各基の置換基は、互いに結合して、置換もしくは未置換の炭素環を形成していてよい。]

【請求項3】 一対の電極間に、少なくとも発光層を有する単層又は複数層からなる有機化合物膜を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該有機化合物膜の少なくとも一層が請求項1又は2に記載の新規炭化水素化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 一対の電極間に、少なくとも発光層を有する単層又は複数層からなる有機化合物膜を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該発光層が請求項1又は2に記載の新規炭化水素化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 一対の電極間に、少なくとも発光層を有する単層又は複数層からなる有機化合物膜を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、電子注入層又は正孔注入層が請求項1又は2に記載の新規炭化水素化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】 前記発光層と電極との間に無機化合物層を設けたことを特徴とする請求項4に記載の有機エレ

トルルミネッセンス素子。

【請求項7】 前記発光層に、発光中心として縮合多環芳香族誘導体を含有することを特徴とする請求項3～6のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は新規炭化水素化合物及び有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に、耐熱性が高く、高発光効率の有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する新規炭化水素化合物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 有機物質を使用した有機エレクトロルミネッセンス(EL)素子は、壁掛テレビの平面発光体やディスプレイのバックライト等の光源として使用され、盛んに開発が行われている。特に、最近では、高耐熱性と高効率を両立させる有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する化合物が開発されている。例えば、特開平8-12600号公報にはフェニルアントラセン化合物及びこれを用いた素子が開示され、ガラス転移温度を140℃以上とすることにより耐熱性を改良しているが、輝度/電波密度/10で算出される発光効率が2cd/A程度と低く、改良が求められていた。また、特開平10-72579号公報には、アミノアントラセン化合物及びそれを用いた素子が開示され、発光効率が改善されているが、耐熱性が十分ではなかった。さらに、特開平10-189247号公報には、フルオランテン系化合物を用いた素子が開示されているが、フルオランテン系化合物の単量体からなる化合物であるため、耐熱性の改良が不十分であった。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、耐熱性が高く、高発光効率の有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する新規炭化水素化合物を提供することを目的とするものである。

【0004】

【課題を解決するための手段】 本発明者らは、前記の好ましい性質を有する有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子)を開発すべく鋭意研究を重ねた結果、フルオランテン構造にアリール構造が結合した新規炭化水素化合物を有機化合物膜に添加すると有機エレクトロルミネッセンス素子の耐熱性が向上し、さらに正孔輸送性及び電子輸送性が向上して高発光効率となることを見出し本発明を完成するに至った。

【0005】 すなわち、本発明は、下記一般式(1)で表される新規炭化水素化合物、

$$X_n - A_{r_1} \dots \quad (1)$$

(式中、A_{r₁}は、置換もしくは未置換の炭素原子数6

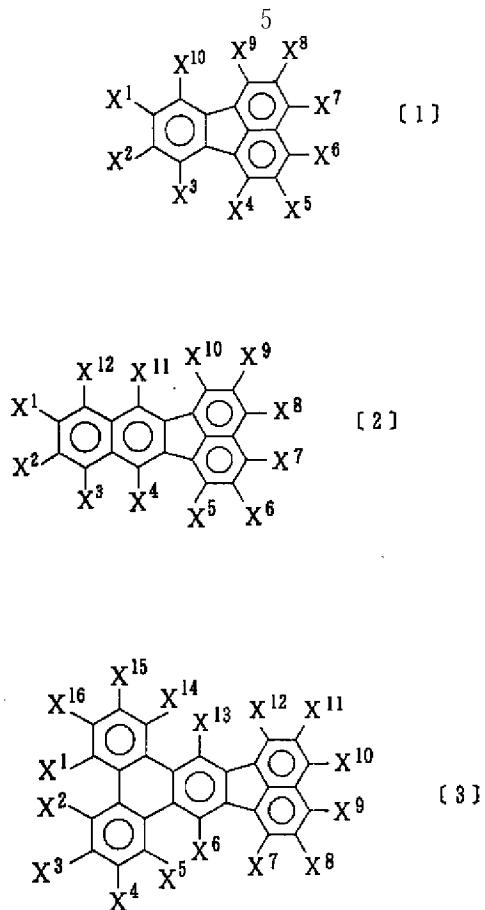
～40の芳香族環基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～40のアリールアミノ基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～60のジアミノアリール基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～60のトリアミノアリール基、置換もしくは未置換の炭素原子数3～40の複素環基又は置換もしくは未置換のエテニレン、Xはフルオランテン構造を有する一価の基、nは2～4の整数である。)を提供するものである。また、本発明は、一对の電極間に、少なくとも発光層を有する単層又は複数層からなる有機化合物膜を有する有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)であって、該有機化合物膜の少なくとも一層が前記新規炭化水素化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子をも提供するものである。

【0006】

【発明の実施の形態】 本発明の新規炭化水素化合物は、上記一般式(1)で表される。式中、A_{r₁}は、置換もしくは未置換の炭素原子数6～40の芳香族環基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～40のアリールアミノ基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～60のジアミノアリール基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～60のトリアミノアリール基、置換もしくは未置換の炭素原子数3～40の複素環基又は置換もしくは未置換のエテニレンである。Xはフルオランテン構造を有する一価の基、nは2～4の整数である。

【0007】 該Xは、下記一般式〔1〕～〔3〕に示す構造を有する化合物の一価の基であることが好ましい。

【化2】



【0008】一般式〔1〕～〔3〕式中、 $X^1 \sim X^{16}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルキル基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルコキシ基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルキルチオ基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニル基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニルオキシ基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニルチオ基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキル基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキルオキシ基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキルチオ基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～20のアリール基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～20のアリールオキシ基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～20のアリールチオ基、置換もしくは未置換の炭素原子数2～30のアミノ基、シアノ基、水酸基、 $-COOR^1$ 基（基中、 R^1 は水素原子、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルキル基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニル基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキル基、又は置換もしくは未置換の炭素原子数6～30のアリール基を表す）、 $-COR$

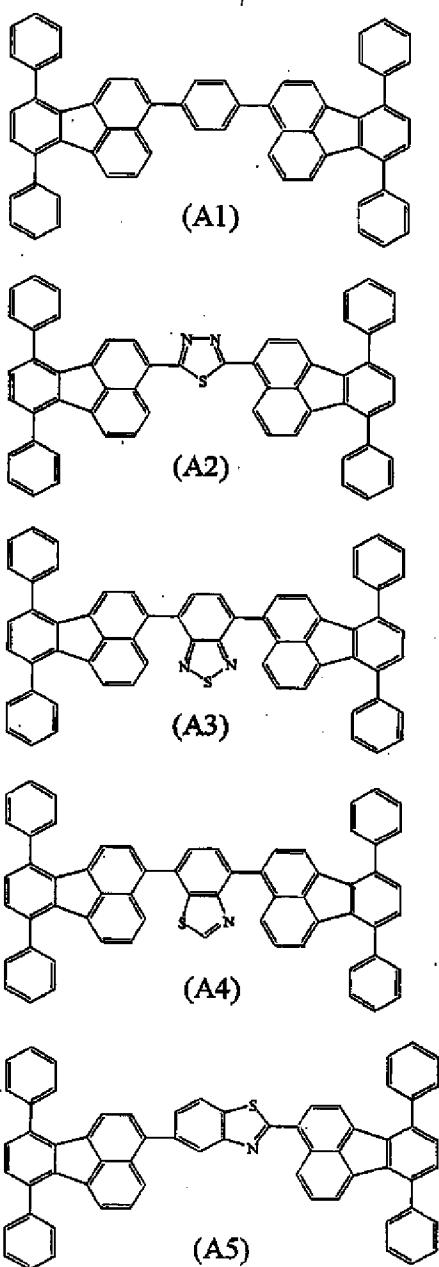
2 基（基中、 R^2 は水素原子、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルキル基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニル基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキル基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～30のアリール基、又はアミノ基を表す）、 $-OCOR^3$ 基（基中、 R^3 は、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数1～30のアルキル基、置換もしくは未置換の直鎖、分岐もしくは環状の炭素原子数2～30のアルケニル基、置換もしくは未置換の炭素原子数7～30のアラルキル基、置換もしくは未置換の炭素原子数6～30のアリール基を表す）を表し、さらに $X^1 \sim X^{16}$ のうち、隣接する基及び各基の置換基は、互いに結合して、置換もしくは未置換の炭素環を形成していくてもよい。

【0009】本発明の有機EL素子は、一対の電極間に、少なくとも発光層を有する単層又は複数層からなる有機化合物膜を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該有機化合物膜の少なくとも一層が前記新規炭化水素化合物を含有する。前記発光層が、前記新規炭化水素化合物を含有することが好ましい。また、電子注入層又は正孔注入層が前記新規炭化水素化合物を含有することも好ましい。前記発光層と電極との間に無機化合物層を設けても良い。前記発光層に、発光中心として縮合多環芳香族誘導体を含有するとさらに好ましい。前記新規炭化水素化合物を、有機化合物膜の少なくとも一層に含有させると耐熱性及び発光効率が向上するのは、フルオランテン構造の蛍光性が高く、さらに上記一般式（1）の化合物において、 $n = 2 \sim 4$ とすることで、該化合物のガラス転移温度が高くなるからである。

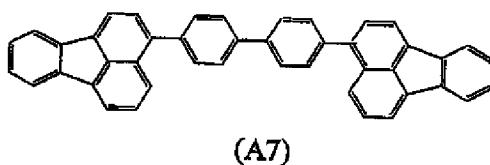
【0010】以下に、本発明の新規炭化水素化合物の代表例（A1）～（A24）を例示するが、本発明はこれらの代表例に限定されるものではない。

【0011】

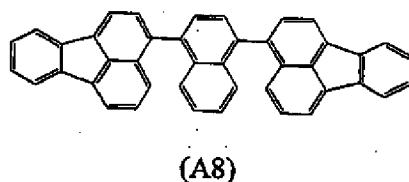
【化3】



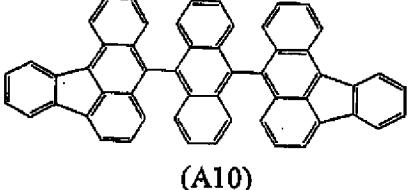
10



20



30



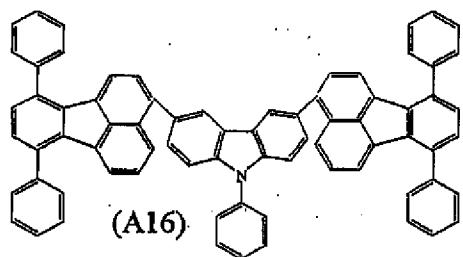
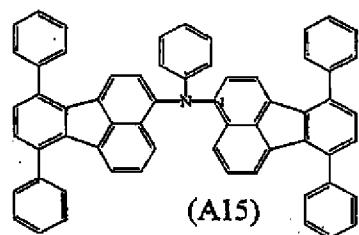
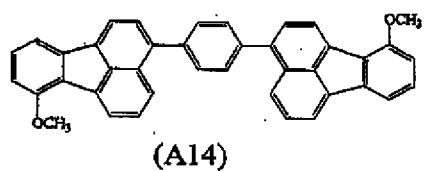
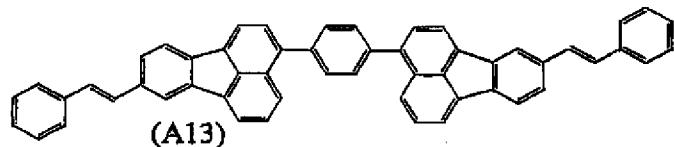
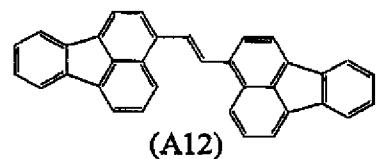
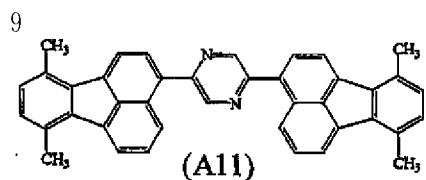
(A10)

【0012】

【化4】

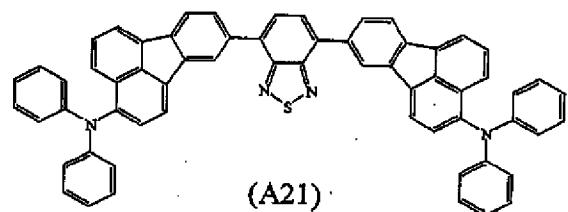
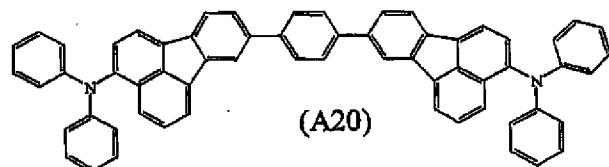
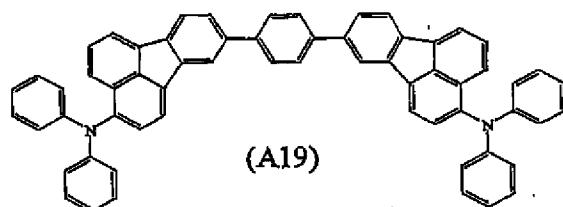
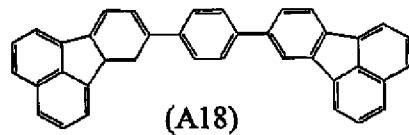
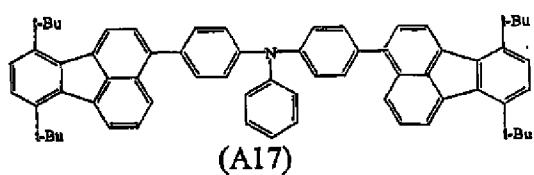
【0013】

【化5】



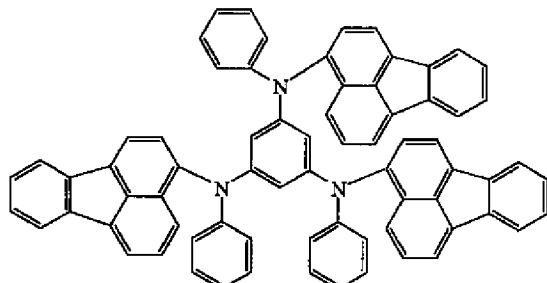
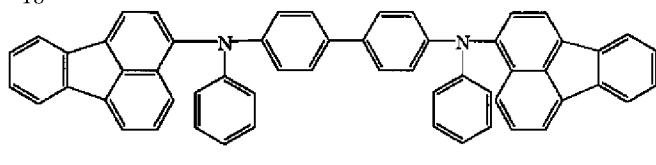
【0014】

【化6】

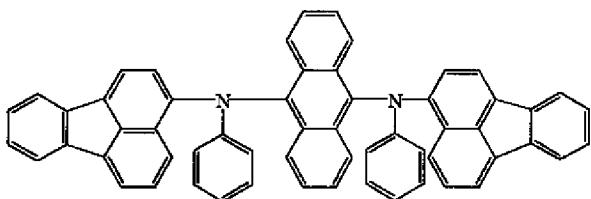


【0015】

【化7】



(A 2 3)



(A 2 4)

【0016】本発明の有機EL素子は、陽極と陰極間に单層もしくは多層の有機化合物膜を形成した素子である。单層型の場合、陽極と陰極との間に発光層を設けている。発光層は、発光材料を含有し、それに加えて陽極から注入した正孔、もしくは陰極から注入した電子を発光材料まで輸送するために、正孔注入材料もしくは電子注入材料を含有しても良い。しかしながら、発光材料は、極めて高い蛍光量子効率、高い正孔輸送能力および電子輸送能力を併せ持ち、均一な薄膜を形成することが好ましい。多層型の有機EL素子は、(陽極／正孔注入層／発光層／陰極)、(陽極／発光層／電子注入層／陰極)、(陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極)の多層構成で積層したものがある。

【0017】発光層には、必要に応じて、本発明の新規炭化水素化合物に加えてさらなる公知の発光材料、ドーピング材料、正孔注入材料や電子注入材料を使用することもできる。この新規炭化水素化合物の好ましい使用法としては、発光層、電子注入層、正孔輸送層又は正孔注入層のいずれかの層に、濃度0.5～50重量%で添加する。さらに好ましくは、濃度1～20重量%である。有機EL素子は、多層構造にすることにより、クエンチングによる輝度や寿命の低下を防ぐことができる。必要

があれば、発光材料、他のドーピング材料、正孔注入材料や電子注入材料を組み合わせて使用することができる。また、他のドーピング材料により、発光輝度や発光効率の向上、赤色や白色の発光を得ることもできる。また、正孔注入層、発光層、電子注入層は、それぞれ二層以上の層構成により形成されても良い。その際には、正孔注入層の場合、電極から正孔を注入する層を正孔注入層、正孔注入層から正孔を受け取り発光層まで正孔を輸送する層を正孔輸送層と呼ぶ。同様に、電子注入層の場合、電極から電子を注入する層を電子注入層、電子注入層から電子を受け取り発光層まで電子を輸送する層を電子輸送層と呼ぶ。これらの各層は、材料のエネルギー準位、耐熱性、有機化合物膜もしくは金属電極との密着性等の各要因により選択されて使用される。

【0018】前記新規炭化水素化合物と共に有機化合物膜に使用できる発光材料またはホスト材料としては、縮合多環芳香族があり、例えばアントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、ペニタセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン、ルブレン及びそれらの誘導体がある。さらに、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラ

フェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペントジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、ベンゾキノリン金属錯体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアニン、イミダゾールキレート化オキシノイド化合物、キナクリドン、ルブレン、スチルベン系誘導体及び蛍光色素等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0019】正孔注入材料としては、正孔を輸送する能力を持ち、陽極からの正孔注入効果、発光層または発光材料に対して優れた正孔注入効果を有し、発光層で生成した励起子の電子注入層または電子注入材料への移動を防止し、かつ薄膜形成能力の優れた化合物が好ましい。具体的には、フタロシアニン誘導体、ナフタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、イミダゾロン、イミダゾールチオン、ピラゾリン、ピラゾロン、テトラヒドロイミダゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ヒドラゾン、アシルヒドラゾン、ポリアリールアルカン、スチルベン、ブタジエン、ベンジジン型トリフェニルアミン、スチリルアミン型トリフェニルアミン、ジアミン型トリフェニルアミン等と、それらの誘導体、およびポリビニカルバゾール、ポリシラン、導電性高分子等の高分子材料が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0020】本発明の有機EL素子において使用できる正孔注入材料の中で、さらに効果的な正孔注入材料は、芳香族三級アミン誘導体もしくはフタロシアニン誘導体である。芳香族三級アミン誘導体の具体例は、トリフェニルアミン、トリトリルアミン、トリルジフェニルアミン、N, N'-ジフェニル-N, N'-(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン、N, N, N', N'-(4-メチルフェニル)-1, 1'-フェニル-4, 4'-ジアミン、N, N, N', N'-(4-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン、N, N'-(メチルフェニル)-N, N'-(4-n-ブチルフェニル)-フェナントレン-9, 10-ジアミン、N, N-ビス(4-ジ-4-トリルアミノフェニル)-4-フェニル-シクロヘキサン等、もしくはこれらの芳香族三級アミン骨格を有したオリゴマーもしくはポリマーであるが、これらに限定されるものではない。フタロシアニン(Pc)誘導体の具体例は、H₂Pc、CuPc、CoPc、NiPc、ZnPc、PdPc、FePc、MnPc、ClAlPc、ClGaPc、ClInPc、ClSnPc、Cl₂SiPc、(HO)AlPc、(HO)GaPc、VOP

10 c、TiOPc、MoOPc、GaPc-O-GaPc等のフタロシアニン誘導体およびナフタロシアニン誘導体であるが、これらに限定されるものではない。

【0021】電子注入材料としては、電子を輸送する能力を持ち、陰極からの電子注入効果、発光層または発光材料に対して優れた電子注入効果を有し、発光層で生成した励起子の正孔注入層への移動を防止し、かつ薄膜形成能力の優れた化合物が好ましい。具体的には、フルオレノン、アントラキノジメタン、ジフェノキノン、チオピランジオキシド、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、ペリレンテトラカルボン酸、フレオレニリデンメタン、アントラキノジメタン、アントロン等とそれらの誘導体が挙げられるが、これらに限定されるものではない。また、正孔注入材料に電子受容物質を、電子注入材料に電子供与性物質を添加することにより電荷注入性を向上させることもできる。

【0022】本発明の有機EL素子において、さらに効果的な電子注入材料は、金属錯体化合物もしくは含窒素五員環誘導体である。金属錯体化合物の具体例は、8-ヒドロキシキノリナートリチウム、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)亜鉛、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)銅、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)マンガン、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)ガリウム、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)ベリリウム、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)亜鉛、ビス(2-メチル-8-キノリナート)クロロガリウム、ビス(2-メチル-8-キノリナート)(o-クレゾラート)ガリウム、ビス(2-メチル-8-キノリナート)(1-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリナート)(2-ナフトラート)ガリウム等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0023】また、含窒素五員誘導体は、オキサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾールもしくはトリアゾール誘導体が好ましい。具体的には、2, 5-ビス(1-フェニル)-1, 3, 4-オキサゾール、ジメチルPOPPOP、2, 5-ビス(1-フェニル)-1, 3, 4-チアゾール、2, 5-ビス(1-フェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)1, 3, 4-オキサジアゾール、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)1, 3, 4-オキサジアゾール、1, 4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)]ベンゼン、1, 4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)-4-tert-ブチルベンゼン]、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1, 3, 4-チアジアゾール、2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、1, 4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)]ベンゼン、1, 4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)-4-tert-ブチルベンゼン]、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1, 3, 4-チアジアゾール、2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-チアジアゾール、1, 4-

ビス[2-(5-フェニルチアジアゾリル)]ベンゼン、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1,3,4-トリアゾール、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-トリアゾール、1,4-ビス[2-(5-フェニルトリアゾリル)]ベンゼン等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。本発明においては、発光層と電極との間に無機化合物層を電荷注入性向上のために設けてよい。このような無機化合物層としては、アルカリ金属化合物(フッ化物、酸化物など)、アルカリ土類金属化合物などがあり、具体的にはLiF、Li₂O、BaO、SrO、BaF₂、SrF₂などが挙げられる。

【0024】有機EL素子の陽極に使用される導電性材料としては、4eVより大きな仕事関数を持つものが適しており、炭素、アルミニウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、タングステン、銀、金、白金、パラジウム等およびそれらの合金、ITO基板、NESTA基板に使用される酸化スズ、酸化インジウム等の酸化金属、さらにはポリチオフェンやポリピロール等の有機導電性樹脂が用いられる。陰極に使用される導電性物質としては、4eVより小さな仕事関数を持つものが適しており、マグネシウム、カルシウム、錫、鉛、チタニウム、イットリウム、リチウム、ルテニウム、マンガン、アルミニウム等およびそれらの合金が用いられるが、これらに限定されるものではない。合金としては、マグネシウム/銀、マグネシウム/インジウム、リチウム/アルミニウム等が代表例として挙げられるが、これらに限定されるものではない。合金の比率は、蒸着源の温度、雰囲気、真空度等により制御され、適切な比率に選択される。陽極および陰極は、必要があれば二層以上の層構成により形成されていても良い。

【0025】有機EL素子では、効率良く発光させるために、少なくとも一方の面は素子の発光波長領域において充分透明にすることが望ましい。また、基板も透明であることが望ましい。透明電極は、上記の導電性材料を使用して、蒸着やスパッタリング等の方法で所定の透光性が確保されるように設定する。発光面の電極は、光透過率を10%以上にすることが望ましい。基板は、機械的、熱的強度を有し、透明性を有するものであれば限定されるものではないが、ガラス基板および透明性樹脂フィルムが挙げられる。透明性樹脂フィルムとしては、ポリエチレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-ビニルアルコール共重合体、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリメチルメタアクリレート、ポリ塩化ビニル、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラール、ナイロン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリサルホン、ポリエーテルサルフォン、テトラフルオロエチレン-パーコロアルキルビニルエーテル共重合体、ポリビニ

ルフルオライド、テトラフルオロエチレン-エチレン共重合体、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリビニリデンフルオライド、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリウレタン、ポリイミド、ポリエーテルイミド、ポリイミド、ポリプロピレン等が挙げられる。

【0026】本発明の有機EL素子は、温度、湿度、雰囲気等に対する安定性の向上のために、素子の表面に保護層を設けたり、シリコンオイル、樹脂等により素子全体を保護することも可能である。有機EL素子の各層の形成は、真空蒸着、スパッタリング、プラズマ、イオンプレーティング等の乾式成膜法やスピンドルティング、ディッピング、フローコーティング等の湿式成膜法のいずれの方法を適用することができる。膜厚は特に限定されるものではないが、適切な膜厚に設定する必要がある。膜厚が厚すぎると、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になり効率が悪くなる。膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生して、電界を印加しても充分な発光輝度が得られない。通常の膜厚は5nmから10μmの範囲が適しているが、10nmから0.2μmの範囲がさらに好ましい。

【0027】湿式成膜法の場合、各層を形成する材料を、エタノール、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサン等の適切な溶媒に溶解または分散させて薄膜を形成するが、その溶媒はいずれであっても良い。また、いずれの有機薄膜層においても、成膜性向上、膜のピンホール防止等のため適切な樹脂や添加剤を使用しても良い。使用の可能な樹脂としては、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、ポリスルフォン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、セルロース等の絶縁性樹脂およびそれらの共重合体、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリシラン等の光導電性樹脂、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性樹脂を挙げられる。また、添加剤としては、酸化防止剤、紫外線吸収剤、可塑剤等を挙げられる。

【0028】本発明の有機EL素子は、例えば壁掛けテレビのフラットパネルディスプレイ等の平面発光体、複写機、プリンター、液晶ディスプレイのバックライト又は計器類等の光源、表示板、標識灯等に利用できる。

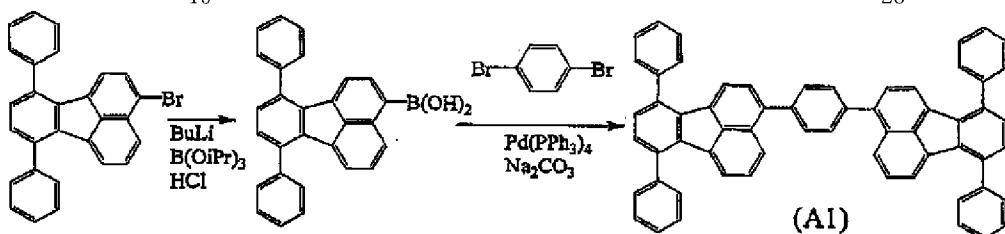
【0029】

【実施例】以下、本発明を合成例及び実施例に基づいてさらに詳細に説明する。

合成例1 (化合物(A1))

以下に示す反応経路によって化合物(A1)を製造した。

【化8】



【0030】(1) 7, 10-ジフェニルフルオランテー3-ボロン酸の合成

アルゴン雰囲気下、3-ブロモ-7, 10-ジフェニルフルオランテン(25g, 58mmol)を無水エーテル(150ml)に溶かし、ドライアイス／メタノール浴で-35℃に冷却した。これにn-ブチルリチウム／ヘキサン溶液(1.50mol/1.43ml, 65mmol)を滴下し、-20℃で1時間攪拌した。反応混合物を-70℃に冷却し、トリイソプロポキシラン(37ml, 0.16mol, 2.8eq)の無水エーテル溶液(30ml)を加えて、-65℃で1時間、室温で2時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に10%塩酸水溶液(150ml)を加えて室温で1時間攪拌後、有機層を分取し、飽和食塩水(5ml)で洗浄、無水硫酸マグネシウムで乾燥、溶媒留去して得られた固体をヘキサンで洗浄して白色固体(19g, 48mmol, 収率83%)を得た。

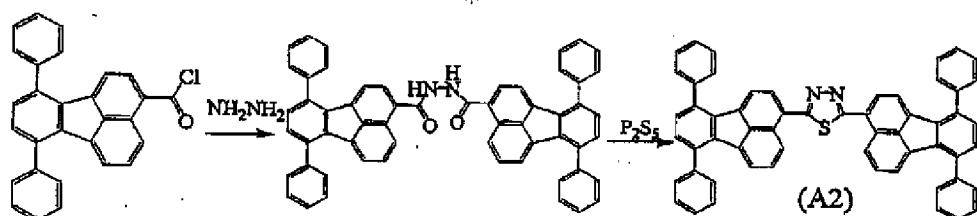
【0031】(2) 1, 4'-ビス(3-(7, 10-ジフェニル)フルオランテニル)ベンゼン(A1)の合成

* アルゴン雰囲気下、7, 10-ジフェニルフルオランテー3-ボロン酸(18g, 45mmol, 2.8eq)、1, 4-ジブロモベンゼン(3.8g, 16mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(0.37g, 0.32mmol, 2%Pd)をトルエン(200ml)に懸濁し、炭酸ナトリウム水溶液(10g, 94mmol, 5.8eq/48ml)を加えて10時間還流し、一晩放置した。反応混合物をろ別し、水、メタノール、アセトンで洗浄して灰色固体(11g, 14mmol, 収率88%)を得、さらに昇華精製により黄色固体(9.1g, 11mmol)を得た。得られた固体は、400MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-MS(フィールドディイソーションマススペクトル)の測定により化合物(A1)であることが確認された。

【0032】合成例2(化合物(A2))

以下に示す反応経路によって化合物(A2)を製造した。

【化9】



【0033】(1) N, N'-ビス(7, 10-ジフェニル-3-フルオラントイル)ヒドラジンの合成

フラスコ中で、ヒドラジンサルフェート(2.2g, 17mmol)を蒸留水(40ml)に加え、さらに水酸化ナトリウム(1.5g, 38mmol)を溶かした水溶液を氷浴で冷やしながら攪拌する。次に水酸化ナトリウム(1.6g, 40mmol)を蒸留水(30ml)に溶かし、7, 10-ジフェニル-3-フルオラントイルクロライド(15g, 36mmol)を加えた溶液を前記フラスコ中に1時間かけて滴下した。さらに、10℃で2時間攪拌した後、ろ過して白色の残さを得た。この残さを50%含水アセトンで洗浄し、再びろ過、乾燥して白色固体(8.7g, 11mmol, 収率65%)を得た。

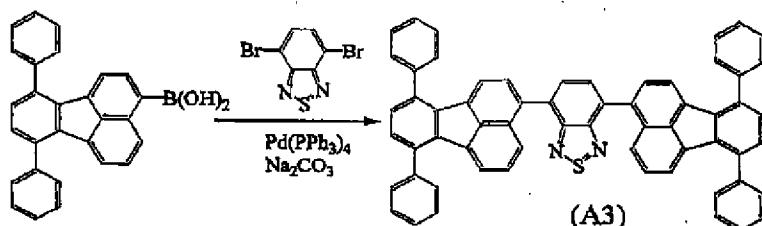
【0034】(2) 2, 5-ビス(3-(7, 10-ジフェニル)フルオランテニル)-1, 3, 4-チアジアゾール(A2)の合成

アルゴン雰囲気下、オスフォラベンタスルフィド(3.2g, 14mmol)、N, N'-ビス(7, 10-ジフェニル-3-フルオラントイル)ヒドラジン(8.7g, 11mmol)を無水クロロホルム(50ml)に加え40時間還流した。その後、10%水酸化カリウム水溶液(50ml)で2回洗浄後、蒸留水でさらに2回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥、溶媒を留去し、カラムクロマトグラフィーで精製して黄色結晶(4.0g, 5.0mmol, 収率45%)を得た。得られた結晶は、400MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-MSの測定により化合物(A2)であることが確認された。

【0035】合成例3(化合物(A3))

以下に示す反応経路によって化合物(A3)を製造した。

【化10】



【0036】(1) 4, 7-ビス(3-(7, 10-ジフェニル)フルオランテニル)-2, 1, 3-ベンゾチアゾール(A3)の合成

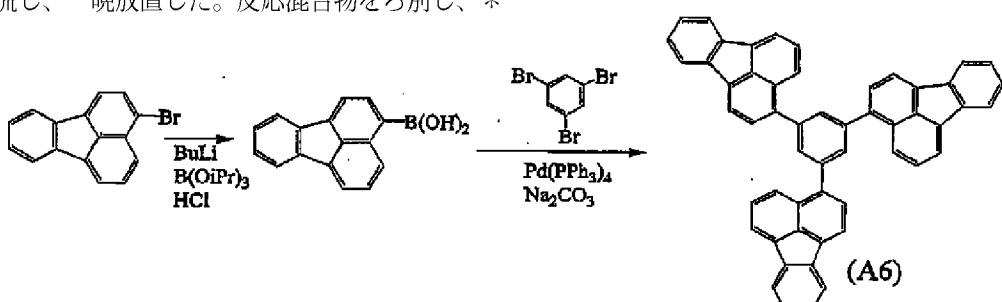
アルゴン雰囲気下、7, 10-ジフェニルフルオランテン-3-ボロン酸(18g, 45mmol, 2.8eq)、4, 7-ジブロモ-2, 1, 3-ベンゾチアゾール(4.7g, 16mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(0.37g, 0.32mmol, 2%Pd)をトルエン(200ml)に懸濁し、炭酸ナトリウム水溶液(10g, 94mmol, 5.8eq/48ml)を加えて10時間還流し、一晩放置した。反応混合物をろ別し、*

*水、メタノール、アセトンで洗浄し、カラムクロマトグラフィーで精製して、やまぶき色固体(9.7g, 12mmol, 収率72%)を得た。得られた固体は、400MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-M-Sの測定により化合物(A3)であることが確認された。

【0037】合成例4(化合物(A6))

以下に示す反応経路によって化合物(A6)を製造した。

【化11】



【0038】(1) フルオランテン-3-ボロン酸の合成

アルゴン雰囲気下、3-ブロモフルオランテン(15g, 53mmol)を無水エーテル(120ml)に溶かし、ドライアイス/メタノール浴で-35℃に冷却した。これにn-ブチルリチウム/ヘキサン溶液(1.50mol/1, 38ml, 58mmol)を滴下し、-20℃で1時間攪拌した。反応混合物を-70℃に冷却し、トリイソプロポキシシラン(28ml, 0.12mol, 2.3eq)の無水エーテル溶液(25ml)を加えて、-65℃で1時間、室温で2時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に10%塩酸水溶液(120ml)を加えて、室温で1時間攪拌後、有機層を分取し、飽和食塩水(40ml)で洗浄、無水硫酸マグネシウムで乾燥、溶媒留去して得られた固体をヘキサンで洗浄して白色固体(11g, 45mmol, 収率85%)を得た。

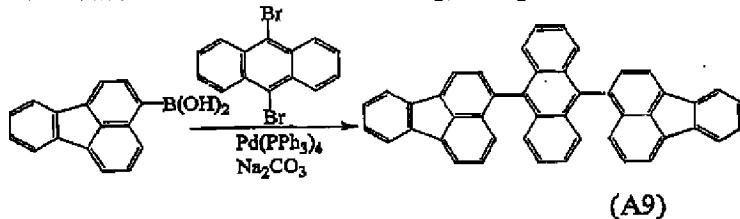
【0039】(2) 1, 3, 5-トリス(3-フルオランテニル)ベンゼン(A6)の合成

*アルゴン雰囲気下、フルオランテン-3-ボロン酸(10g, 41mmol, 3.8eq)、1, 3, 5-トリブロモベンゼン(3.5g, 11mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(0.29g, 0.25mmol, 2.3%Pd)をトルエン(150ml)に懸濁し、炭酸ナトリウム水溶液(9g, 86mmol, 7.8eq/43ml)を加えて10時間還流し、一晩放置した。反応混合物をろ別し、水、メタノール、アセトンで洗浄して灰色固体(6.5g, 9.6mmol, 収率87%)を得、さらに昇華精製により黄色固体(4.3g, 6.4mmol)を得た。得られた固体は、400MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-M-Sの測定により化合物(A6)であることが確認された。

【0040】合成例5(化合物(A9))

以下に示す反応経路によって化合物(A9)を製造した。

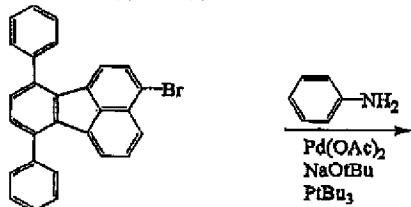
【化12】



【0041】(1) 9, 10-ビス(3-フルオランテニル)アントラセン(A9)の合成

アルゴン雰囲気下、フルオランテン-3-ボロン酸(10g, 41mmol, 2.2eq)、9, 10-ジブロモアントラセン(6.50g, 18mmol, 1.6eq)、4,7-dibromo-2-methyl-1,3-dihydro-2H-1,2-diazepine(1.5g, 4.5mmol, 0.25eq)、Pd(PPh3)4(0.3g, 0.25mmol, 0.05%Pd)、Na2CO3(4.5g, 41mmol, 1.0eq)をトルエン(200ml)に懸濁し、炭酸ナトリウム水溶液(4.5g, 41mmol, 1.0eq/48ml)を加えて10時間還流し、一晩放置した。反応混合物をろ別し、水、メタノール、アセトンで洗浄して白色固体(6.5g, 18mmol, 収率87%)を得、さらに昇華精製により黄色固体(4.3g, 12mmol)を得た。得られた固体は、400MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-M-Sの測定により化合物(A9)であることが確認された。

3g, 19mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(0.44g, 0.38mmol, 2%Pd)をトルエン(150mL)に懸濁し、炭酸ナトリウム水溶液(8.6g, 82mmol, 4.4eq/40mL)を加えて10時間還流し、一晩放置した。反応混合物をろ別し、水、メタノール、アセトンで洗浄して灰色固体(10g, 17mmol, 収率91%)を得、さらに昇華精製により黄色固体(8.4g, 14mmol)を得た。得られた固体は、4*



【0043】(1) N, N'-ビス(3-(7, 10-ジフェニル)フルオランテニル)アニリン(A15)の合成

アルゴン雰囲気下、3-ブロモ-7, 10-ジフェニルフルオランテン(5g, 12mmol)、酢酸パラジウム(2)(0.06g, 0.3mmol)、トリ-*t*-ブチルホスフィン(0.23g, 1.1mmol)、*t*-ブロトキシナトリウム(1.6g, 16mmol)、アニリン(0.5g, 6mmol)を無水トルエン(50mL)に加え、30分室温で攪拌後、7時間還流した。析出した結晶をろ別し、トルエン、水で洗浄後、減圧乾燥して黄色固体を得た。さ*

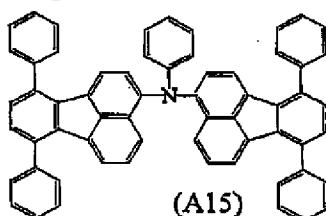
るにカラムクロマトグラフィーで精製して、淡黄色固体(4.5g, 5.7mmol, 収率96%)を得た。得られた固体は、400MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-MSの測定により化合物(A15)であることが確認された。

* 0.0MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-MSの測定により化合物(A9)であることが確認された。

【0042】合成例6(化合物(A15))

以下に示す反応経路によって化合物(A15)を製造した。

【化13】

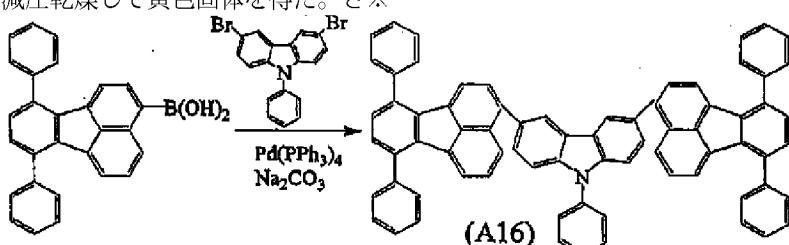


※らにカラムクロマトグラフィーで精製して、淡黄色固体(4.5g, 5.7mmol, 収率96%)を得た。得られた固体は、400MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-MSの測定により化合物(A15)であることが確認された。

【0044】合成例7(化合物(A16))

以下に示す反応経路によって化合物(A16)を製造した。

【化14】



【0045】(1) 3, 6-ビス(3-(7, 10-ジフェニル)フルオランテニル)-9-フェニルカンバゾール(A16)の合成

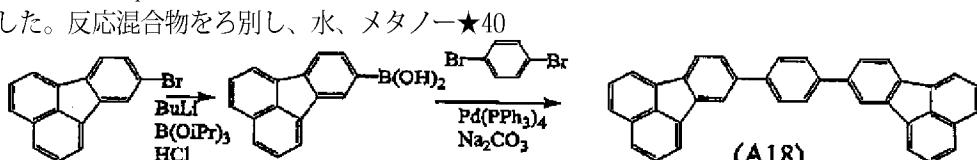
アルゴン雰囲気下、7, 10-ジフェニルフルオランテン-3-ボロン酸(9g, 22mmol, 2.4eq)、3, 6-ジブロモ-9-カンバゾール(3.7g, 9.2mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(0.21g, 0.18mmol, 1.2%Pd)をトルエン(100mL)に懸濁し、炭酸ナトリウム水溶液(6.9g, 65mmol, 7.0eq/33mL)を加えて14時間還流し、一晩放置した。反応混合物をろ別し、水、メタノールで洗浄し、カラムクロマトグラフィーで精製して、淡黄色固体(8.1g, 8.5mmol, 収率92%)を得た。得られた固体は、400MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-MSの測定により化合物(A16)であることが確認された。

★ル、アセトンで洗浄し、カラムクロマトグラフィーで精製して、淡黄色固体(8.1g, 8.5mmol, 収率92%)を得た。得られた固体は、400MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-MSの測定により化合物(A16)であることが確認された。

【0046】合成例8(化合物(A18))

以下に示す反応経路によって化合物(A18)を製造した。

【化15】



【0047】(1) フルオランテン-8-ボロン酸の合成

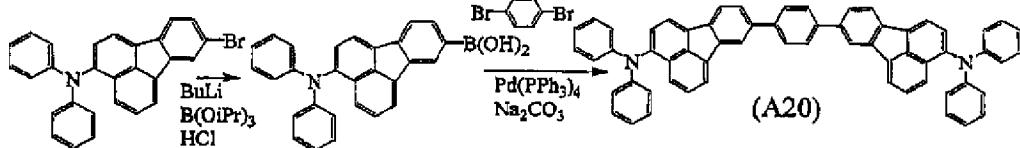
アルゴン雰囲気下、8-ブロモフルオランテン(15g, 53mmol)を無水エーテル(120mL)に溶かし、ドライアイス/メタノール浴で-35°Cに冷却した。これに*n*-ブチルリ

チウム/ヘキサン溶液(1.50mol/1,38mL, 58mmol)を滴下し、-20°Cで1時間攪拌した。反応混合物を-70°Cに冷却し、トリイソプロポキシラン(28mL, 0.12mol, 2.3eq)の無水エーテル溶液(25mL)を加えて、-65°Cで1時間、室温で2時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に10%

塩酸水溶液(120ml)を加えて室温で1時間攪拌後、有機層を分取し、飽和食塩水(40ml)で洗浄、無水硫酸マグネシウムで乾燥、溶媒留去して得られた固体をヘキサンで洗浄して白色固体(12g, 49mmol, 収率92%)を得た。

【0048】(2) 1, 4-ビス(8-フルオランテニル)ベンゼン(A18)の合成

アルゴン雰囲気下、フルオランテン-8-ボロン酸(9g, 37mmol, 2.3eq)、1, 4-ジプロモベンゼン(3.8g, 16mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(0.37g, 0.32mmol, 2%Pd)をトルエン(200ml)に懸濁し、炭酸ナトリウム水溶液(10g, 94mmol, 5.8eq/48ml)を*



【0050】(1) 3-N, N'-ジフェニルアミノフルオランテン-8-ボロン酸の合成

アルゴン雰囲気下、3-N, N'-ジフェニルアミノフルオランテン(12g, 27mmol)を無水エーテル(100ml)に溶かし、ドライアイス/メタノール浴で-35°Cに冷却した。これにn-ブチルリチウム/ヘキサン溶液(1.50mol/1, 19ml, 29mmol)を滴下し、-20°Cで1時間攪拌した。反応混合物を-70°Cに冷却し、トリイソプロポキシシンラン(14ml, 60mmol, 2.2eq)の無水エーテル溶液(20ml)を加えて、-65°Cで1時間、室温で3時間攪拌し、一晩放置した。反応混合物に10%塩酸水溶液(100ml)を加えて室温で1時間攪拌後、有機層を分取し、飽和食塩水(36ml)で洗浄、無水硫酸マグネシウムで乾燥、溶媒留去して得られた固体をヘキサンで洗浄して白色固体(9.2g, 23mmol, 収率85%)を得た。

【0051】(2) 1, 4-ビス(8-(3-N, N'-ジフェニルアミノ)フルオランテニル)ベンゼン(A20)の合成

アルゴン雰囲気下、3-N, N'-ジフェニルアミノフルオランテン-8-ボロン酸(9g, 22mmol, 2.2eq)、1, 4-ジプロモベンゼン(2.4g, 10mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)(0.23g, 0.20mmol, 2%Pd)をトルエン(150ml)に懸濁し、炭酸ナトリウム水溶液(6.4g, 60mmol, 6.0eq/31ml)を加えて12時間還流し、一晩放置した。反応混合物をろ別し、水、メタノール、アセトンで洗浄して灰色固体(6.9g, 8.5mmol, 収率85%)を得、さらに昇華精製により淡黄色固体(5.2g, 6.4mmol)を得た。得られた固体は、400MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-MSの測定により化合物(A20)であることが確認された。

【0052】実施例1

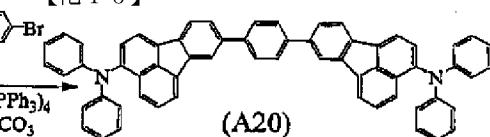
25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極付きガラス基板(ジオマティック社製)をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分

*加えて10時間還流し、一晩放置した。反応混合物をろ別し、水、メタノール、アセトンで洗浄して灰色固体(7.4g, 15mmol, 収率94%)を得、さらに昇華精製により淡黄色固体(6.0g, 12mmol)を得た。得られた固体は、400MHz NMRスペクトル、プロトンNMRスペクトル及びFD-MSの測定により化合物(A18)であることが確認された。

【0049】合成例9(化合物(A20))

以下に示す反応経路によって化合物(A20)を製造した。

【化16】



間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、前記透明電極を覆うようにして膜厚60nmのN, N'-ビス(N, N'-ジフェニル-4-アミノフェニル)-N, N'-ジフェニル-4, 4'-ジアミノ-1, 1'-ビフェニル膜(以下、TPD232膜)を成膜した。このTPD232膜は、正孔注入層として機能する。次に、TPD232膜上に膜厚20nmの4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル膜(以下、NPD膜)を成膜した。このNPD膜は正孔輸送層として機能する。さらに、NPD膜上に膜厚40nmの上記化合物(A1)を蒸着し成膜した。この膜は、発光層として機能する。この膜上に膜厚20nmのトリス(8-キノリノール)アルミニウム膜(以下、Alq膜)を成膜した。このAlq膜は、電子注入層として機能する。この後Li(Li源: サエスゲッター社製)とAlqを二元蒸着させ、電子注入層(陰極)としてAlq: Li膜を形成した。このAlq: Li膜上に金属Alを蒸着させ金属陰極を形成し有機EL素子を作製した。この素子は直流電圧6Vで発光輝度150cd/m²、最大発光輝度43000cd/m²、発光効率3.0cd/Aの青色発光が得られた。

【0053】実施例2~8

実施例1において、化合物(A1)の代わりに表1に示す化合物を使用したことを除き同様にして、有機EL素子を作製し、直流電圧6Vで、発光輝度、発光効率、ガラス転移温度を測定し、発光色を観察し、さらに耐熱性テストとして85°Cの温度下に500時間保存した後に、初期輝度からの発光減少率を測定した。その結果を表1に示す。

【0054】比較例1

実施例1において、化合物(A1)の代わりに、7, 10-ジフェニルフルオランテン(DPF)を使用したことを除き同様にして、有機EL素子を作製し、直流電圧

5Vで、発光輝度、発光効率を測定し、発光色を観察し、さらに耐熱性テストとして85°Cの温度下に500時間保存した後に、初期輝度からの発光減少率を測定した。その*

表 1

*結果を表1に示す。

【0055】

【表1】

	化合物の種類	電圧(V)	発光輝度(cd/m ²)	発光効率(cd/A)	発光色	発光減少率(%)	ガラス転移温度(%)
実施例 2	(A2)	6	130	4.5	青緑	2	>100
実施例 3	(A3)	6	131	3.7	緑	5	>100
実施例 4	(A6)	6	155	4.7	青	1	>100
実施例 5	(A9)	6	310	5.8	青	-5	>100
実施例 6	(A15)	6	320	4.1	青	-3	>100
実施例 7	(A16)	6	260	6.0	青	5	>100
実施例 8	(A18)	6	213	4.8	青	2	>100
比較例 1	DPF	5	150	2.5	青緑	短絡した	<80

【0056】表1に示したように、本発明の新規炭化水素化合物を利用した有機EL素子は、発光効率が高く、耐熱性に優れている。これは、本発明の新規炭化水素化合物のガラス転移温度が100°C超と高く、青色～緑色領域にわたる蛍光性を保持するためである。

【0057】実施例9

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極付きガラス基板(ジオマティック社製)をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、前記透明電極を覆うようにして膜厚60nmのTPD232膜を成膜した。このTPD232膜は、正孔注入層として機能する。次に、TPD232膜上に膜厚20nmに上記化合物(A15)からなる膜を成膜した。この(A15)膜は正孔輸送層として機能する。さらに、(A15)膜上に膜厚40nmのA1q及びルブレンを重量比30:1で蒸着し成膜した。この膜は、発光層として機能する。この膜上に膜厚20nmのA1q膜を成膜した。このA1q膜は、電子注入層として機能する。この後Li(Li源:サエスゲッター社製)とA1qを二元蒸着させ、電子注入層(陰極)としてA1q:Li膜を形成した。このA1q:Li膜上に金属A1を蒸着させ金属陰極を形成し有機EL素子を作製した。この素子は直流電圧5.5Vで発光輝度250cd/m²、最大発光輝度93000cd/m²、発光効率12.0cd/Aと極めて高い発光効率の黄色発光が得られた。また、初期輝度を1000cd/m²として定電流駆動して寿命試験を行ったところ半減寿命5000時間と極めて長かった。以上のことから、本発明の新規炭化水素化合物は、電子輸送性の化合物として極めて優れている。

【0058】実施例10

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極付きガラス基板(ジオマティック社製)をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に、前記透明電極を覆うようにして膜厚60nmのTPD232膜を成膜した。このTPD232膜は、正孔注入層として機能する。次に、TPD232膜上に膜厚20nmに上記化合物(A3)からなる膜を成膜した。この(A3)膜は、電子注入層として機能する。この後、無機化合物膜として、膜厚1nmのLiF膜を形成した。このLiF膜上に金属A1を蒸着させ金属陰極を形成し有機EL素子を作製した。この素子は直流電圧5.5Vで発光輝度250cd/m²、最大発光輝度93000cd/m²、発光効率12.0cd/Aと極めて高い発光効率の黄色発光が得られた。また、初期輝度を1000cd/m²として定電流駆動して寿命試験を行ったところ半減寿命5000時間と極めて長かった。以上のことから、本発明の新規炭化水素化合物は、電子輸送性の化合物として極めて優れている。

【0059】実施例11

実施例10において、LiF膜の無機化合物膜を形成する代わりに、上記化合物(A3)とCs(セシウム)をモル比1:1で混合した電子輸送性化合物と還元性化合物との混合型電子注入層を形成した有機EL素子を作製した。この素子は直流電圧4.5Vで発光輝度1020cd/m²とさらに低電圧駆動となり、最大発光輝度123000cd/m²、発光効率13.0cd/Aと極めて高い発光効率の黄色発光が得

られた。また、初期輝度を1000cd/m²として定電流駆動して寿命試験を行ったところ半減寿命5800時間と極めて長かった。

【0060】

【発明の効果】以上、詳細に説明したように、本発明の*

* 新規炭化水素化合物を利用した有機エレクトロルミネッセンス素子は、耐熱性が高く、発光効率も高く、さらには長寿命である。このため、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、壁掛けテレビの平面発光体やディスプレイのバックライト等の光源として有用である。

フロントページの続き

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード ⁸ (参考)
C 0 9 K 11/06	6 5 0	C 0 9 K 11/06	6 5 0
	6 5 5		6 5 5
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B
33/22		33/22	B
			D
			Z